



TITLE:

1/4充填の擬1次元有機伝導体における新たに見出された基底状態について(修士論文(1997年度))

AUTHOR(S):

小林, 暢子

CITATION:

小林, 暢子. 1/4充填の擬1次元有機伝導体における新たに見出された基底状態について(修士論文(1997年度)). 物性研究 1999, 71(6): 946-985

ISSUE DATE:

1999-03-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/96581>

RIGHT:

修士論文 (1997年度)

1/4 充填の擬 1 次元有機伝導体における 新たに見出された基底状態について¹

小林 暢子
東京大学大学院理学系研究科

Contents

1 序論	947
1.1 概要	947
1.2 (TMTCF) ₂ X 塩	948
1.2.1 伝導鎖に沿った二量体化	949
1.2.2 電荷の局在	951
1.2.3 $2k_F$ 不安定性	953
1.2.4 統一された相図	955
1.3 (TMTSF) ₂ PF ₆ の電荷状態に関する実験	956
1.3.1 $2k_F$ CDW のゆらぎ	957
1.3.2 基底状態における SDW と CDW の共存	957
2 擬 1 次元伝導体の電子状態に関する理論・レビュー	959
2.1 擬 1 次元 1/2 充填系の基底状態	959
2.2 擬 1 次元 1/4 充填系の基底状態	960
3 SDW・CDW 共存の理論	963
3.1 (U,K) モデル	964
3.1.1 定式化	964
3.1.2 結果	969
3.1.3 議論とまとめ	969
3.2 (U,V) モデル	971
3.2.1 定式化	971
3.2.2 結果	976
3.2.3 議論とまとめ	980
4 全体のまとめと将来の挑戦	982

¹ この修士論文は英文であったが、編集部が依頼して、日本語に書き直していただいたものである。

Chapter 1

序論

1.1 概要

過去 20 年以上にわたり、固体物理学において有機伝導物質という比較的新しい分野が劇的に展開した。有機伝導体の構造は複雑であるが、低次元性ということもあって、多くの本質的な物理現象が相次いで発見されてきた。3 次元電子ガスではフェルミ面は球状であるが、2 次元、1 次元系では円筒状または平面状のものになり、その結果フェルミ面の“ネスティング”によりパイエルス不安定性が引き起こされる。パイエルス転移温度以下の有機伝導体は、 $2k_F$ 電荷密度波 (CDW) または $2k_F$ スピン密度波 (SDW) の秩序を持った典型的な状態になる。さらに、強いクーロン反発があると $4k_F$ CDW になる。このような多様な状態が可能であるということは、擬 1 次元 (Q1D) 有機物の相図を複雑で興味あるものになっている。

歴史的に有名な有機物の中で、Bechgaard 塩として知られる $(\text{TMTSF})_2\text{X}$ のグループが、この論文の中心である。とくに比較的良く知られている物質である $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ を取り上げる。

15 年以上も前に、 $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ で最初に超伝導が見出されて以来、この物質は低温での競合する不安定性という観点から実験的にも [1] 理論的にも [2, 3, 4] 研究されてきた [5]。この物質は Bechgaard 塩の 1 つで擬 1 次元 1/4-充填の伝導体である。一般には非常に低温で典型的な SDW 状態になると思われていたが、最近の実験で純粋な $2k_F$ SDW という描像が当てはまらないのではないかとということが議論されるようになった。つまり X 線解析の結果から、 $2k_F$ SDW と共存して $2k_F$ CDW が生じているということがわかったのである [6]。この論文では、この新たに見つかった共存状態の微視的な原因を明らかにするために、2 つの理論的モデルを調べる。第 1 のモデルは、伝導鎖方向の単位格子の二量体化の効果を強調したものである。また第 2 のモデルでは、長距離クーロン相互作用の効

果を調べた。両方の場合について、平均場近似を用いる。

この論文の構成は以下のようになっている。1.2節では $(\text{TMTCF})_2\text{X}$ についての電氣的な性質と基本的特徴をまとめる。 $(\text{TMTCF})_2\text{X}$ とは、Bechgaard 塩 $(\text{TMTSF})_2\text{X}$ と、その硫黄置換物質 $(\text{TMTTF})_2\text{X}$ に対する一般名称である。次に $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ に対する実験のまとめを 1.3 節で行ない、その電氣的性質と状態を明らかにする。第 2 章では、 $1/2$ 充填と $1/4$ 充填の擬 1 次元電子系の基底状態に関する理論をまとめる。次の第 3 章で、共存が起こり得る基底状態を説明するために 2 つの理論的モデルを導入し、その結果を議論する。最後に第 4 章では、この論文のまとめを行ない、将来の問題について記述する。

1.2 $(\text{TMTCF})_2\text{X}$ 塩

$(\text{TMTCF})_2$ 塩は擬 1 次元伝導体である [7]。図 1.1 に示したように、光学測定の結果、室温では積層方向にのみコヒーレントな電気伝導がみられる。鎖間結合は低温に行くに従って

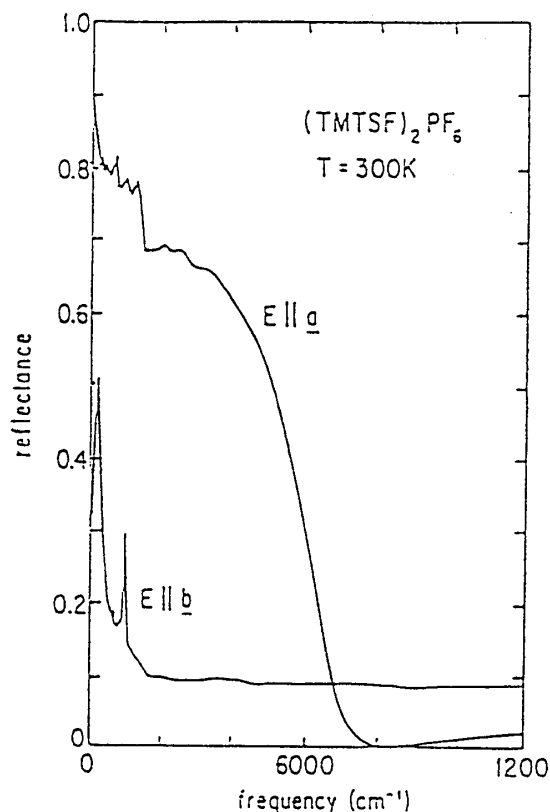


Figure 1.1: 室温における $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ の光学反射率。鎖方向に平行と垂直、両方について測られている。 a は鎖方向、 b は鎖に垂直方向である。参考文献 [8] から転載。

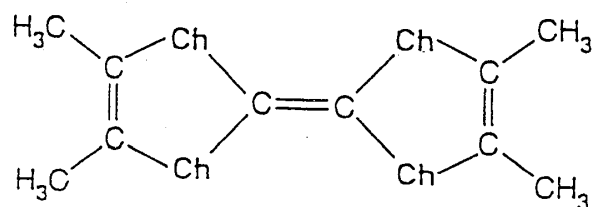


Figure 1.2: TMTCF 分子。文献 [10] から転載。

重要でなくなるが [9]、伝導方向に垂直なホッピングの大きさは十分小さく ($4t_a : 4t_b : 4t_c = 1 : 0.1 : 0.003\text{eV}$) フェルミ面は開いたものになっている。

TMTCF 分子の構造を、図 1.2 に示す。化学式は $(\text{CH}_3)_4\text{C}_6\text{Ch}_4$ である。ここで Ch はカルコゲナイド原子を示し、TMTSF では Se、TMTTF では S である。 $(\text{TMTCF})_2\text{X}$ 塩の結晶構造は、三斜晶系の $\text{P}\bar{1}$ 空間群であり、単位胞中に 2 つの電子供給体 (TMTCF 分子) と 1 つのアニオン X を持つ。アニオンはその対称性によって分類され、点的 (Br^-)、正八面体 (PF_6^- , AsF_6^- , SbF_6^- , ...)、正四面体 (ClO_4^- , BF_4^- , ReO_4^- , ...), 三角形 (NO_3^- , ...), または線形 (SCN^- , ...) などがある。これらのアニオン対称性による分類は、アニオンの秩序相転移を考える場合重要であるが、ここではこの問題は扱わない。アニオンはスピンを持たず、 X^{-1} が閉殻を構成するので、もし二量体化がないとすると $(\text{TMTCF})_2\text{X}$ 塩の伝導帯は電子でいうと 3/4 充填されたバンドである。ホール描像では 1/4 充填となる。

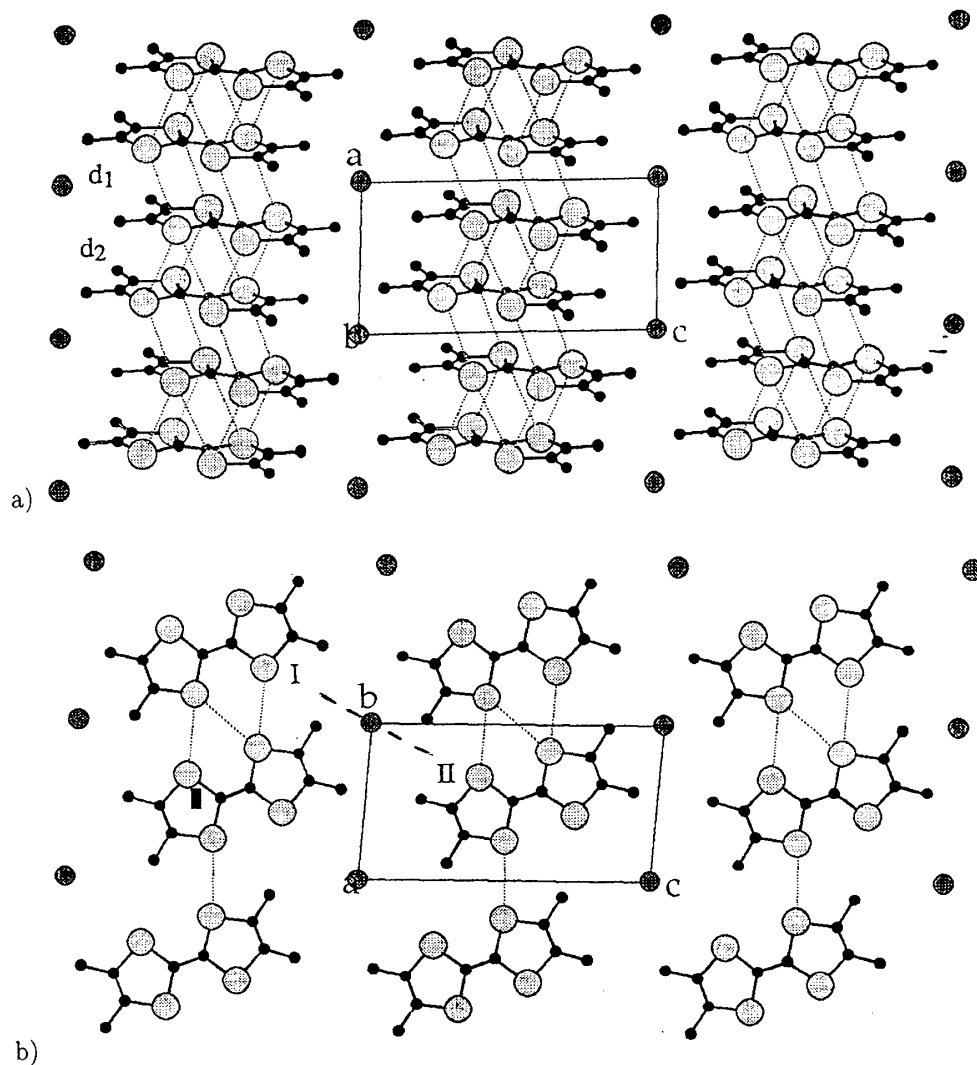
1.2.1 伝導鎖に沿った二量体化

平面的な分子である TMTCF 電子供給体は、最も伝導度の高い a 方向に積層している。図 1.3 に示したように、この分子はジグザグに重なりあい、少し二量体化しているために d_1, d_2 という 2 つの間隔を持つ。このような 2 種類の間隔があることと、積層方向に垂直なジグザク変位のために、TMTCF 分子間の遷移積分は t_1, t_2 という 2 つの値を持つことになる。それぞれ d_1, d_2 の格子間隔と対応している。

二量体化の程度は t_1, t_2 の相対的な差、つまり

$$\Delta t / \langle t \rangle = 2(t_1 - t_2) / (t_1 + t_2). \quad (1.1)$$

によって表わすことができる。拡張ヒュッケル近似の範囲内で評価された、電子供給体の HOMO 軌道に対する t_i の値を表 1.1 に示した [11]。この計算ではアニオンのポテンシャルは無視されている。表 1.1 から、二量体化の程度が “Se” から “S” へ変わることによって増加することがわかる。つまり TMTSF より TMTTF の方が二量体化は大きい。またアニオンの形によっても二量体化の程度は変わり、 $\text{PF}_6 \rightarrow \text{ClO}_4$, $\text{ReO}_4 \rightarrow \text{NO}_3$, Br という順で減少していることがわかる。

Figure 1.3: $(\text{TMTCF})_2\text{X}$ の結晶構造。文献 [11] から転載Table 1.1: $(\text{TMTSF})_2\text{X}$ と $(\text{TMTTF})_2\text{X}$ 塩に対する、1次元鎖内遷移積分 t_1, t_2 と二量体化の度合 $\Delta t / \langle t \rangle$ 。単一 ζ スレーター型の軌道から計算された。文献 [11] から転載。

Compound	Conditions	$t_1(\text{meV})$	$t_2(\text{meV})$	$\Delta t / \langle t \rangle$
$(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$	4K, 1bar	280	254	0.10
$(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$	7K, 1bar	287	266	0.08
$(\text{TMTSF})_2\text{ReO}_4$	295K, 1bar	248	215	0.14
$(\text{TMTSF})_2\text{NO}_3$	295K, 1bar	243	224	0.08
$(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$	4K, 1bar	146	123	0.17
$(\text{TMTTF})_2\text{ClO}_4$	295K, 1bar	140	100	0.33
$(\text{TMTTF})_2\text{Br}$	295K, 1bar	133	119	0.11

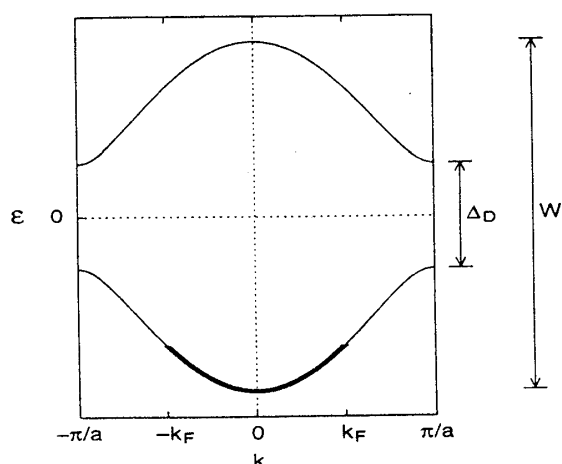


Figure 1.4: 二量体化を持つ 1/4 充填 1 次元伝導体の 1 電子バンド分散式の模式図。文献 [2] から転載。

このような二量体化の変化は、これら 2:1 塩の電氣的性質を劇的に変える。 a を TMTTF 分子の隣り合った二量体間の距離としよう。この二量体化による新しい逆格子空間での周期 $2\pi/a$ は 1 次元電子ガスの $4k_F$ の波数に相当する。その結果二量体化は $4k_F$ の波数を持った電荷の局在を拡大することができる。このことについては 1.2.2 節で考察する。別な言い方をすれば、1/4 充填の系が二量体化のために、実効的な 1/2 充填に変わったことになる。この系の $U=0$ の場合のバンド描像を図 1.4 に模式的に示す。この図では、(ホールに関して)1/4 充填の系が、二量体化によるギャップ Δ_D の存在により実効的に 1/2 充填になる様子が示されている。

1.2.2 電荷の局在

(TMTCF)₂X 塩の様々な二量体化の大きさは、その基底状態と深く関係している。図 1.5 に示したように (TMTSF)₂X の電気抵抗は温度の減少とともに増加し、 T_N で金属絶縁体転移する [12]。一方 (TMTTF)₂X は図 1.6 に示したように T_p 付近で電気抵抗の幅広いミニマムがあり、それ以下の温度では温度の減少とともに増加する [13]。この電気伝導度の幅広い山は TMTTF 二量体上への電子の局在のせいであると考えられている。これは二量体化により実効的に 1/2 充填になった系での強いクーロン相互作用によって引き起こされたものである。(図 1.4 参照)。このクーロン相互作用のために、電荷ギャップ ($2\Delta_\rho$) が生じ、その効果が T_p ($\sim \Delta_\rho$) 以下の温度で現れてくるのである。 a を TMTTF 分子の隣り合う二量体間の距離とすると、電子の局在は周期 a を持ちその波数は

$$4k_F = 2\pi/a. \quad (1.2)$$

となる。このような振舞はモット絶縁体へのクロスオーバーを意味していると考えら

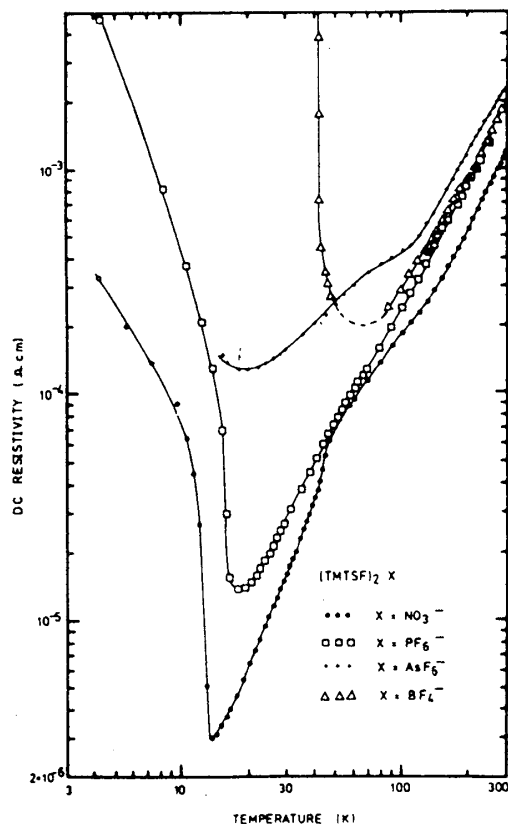


Figure 1.5: いろいろな X に対する $(\text{TMTSF})_2\text{X}$ 塩の電気抵抗の温度依存性。文献 [12] から転載。

れている。

表 1.1 に示したように、TMTSF 塩と比べて、TMTTF 塩の遷移積分 $\langle t \rangle = (t_1 + t_2)/2$ は小さく、二量体化の程度 $\Delta t / \langle t \rangle$ は大きい。前者は実効的なクーロン相互作用 $U / \langle t \rangle$ を大きくする働きがある。また二量体化によるギャップは $\Delta_D = 2(t_1 - t_2)$ と表されるので、TMTTF 塩では $\Delta_D / \langle t \rangle$ が大きいことを意味する。理論的には [15] $4k_F$ ウムクラップ相互作用 (g_3) は、クーロン斥力によっても、二量体化ギャップによっても増大することがわかっている。その結果 TMTTF 塩では大きな電荷ギャップ Δ_ρ が生じ、Se 類似体では小さなギャップになるのである。1 次元二量体化ハバードモデルの範囲内で調べると、 $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ で Δ_ρ は約 $\langle t \rangle / 50$ 、 $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ で約 $\langle t \rangle / 4$ と評価されている [11]。Penc と Mila [2] による評価によると Δ_ρ は上記の値より多少小さいが、 $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ に比べて $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ の方がかなり大きいという結論は同じである。

電荷の局在がないまま、 $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ は常圧下温度 T_N で SDW 転移する。これについては次章で詳しく論じる。この SDW は擬 1 次元伝導体の湾曲したフェルミ面の良いネステイングによるものである。

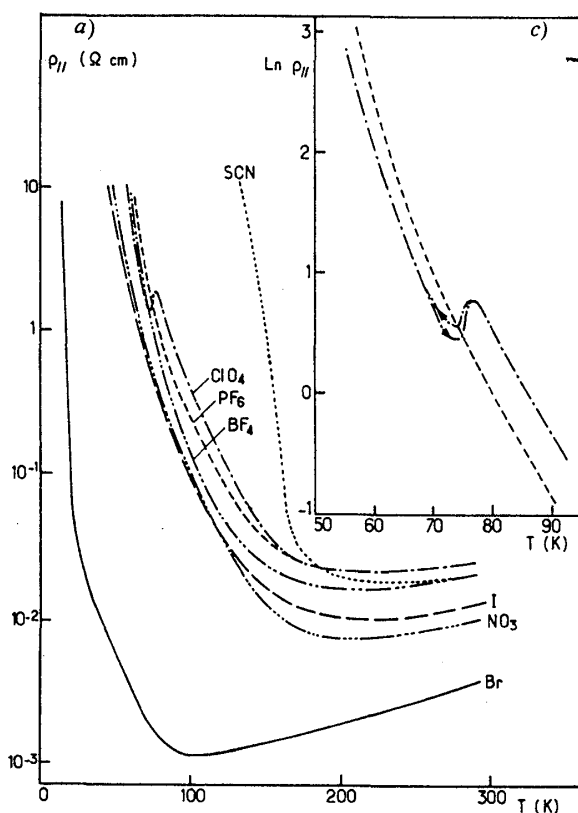


Figure 1.6: いろいろな X に対する $(\text{TMTTF})_2\text{X}$ 塩の電気抵抗の温度依存性。文献 [13] から転載。

1.2.3 $2k_F$ 不安定性

擬 1 次元電子系の示す $2k_F$ 不安定性の結果、波数 $2k_F$ の CDW と SDW が生じることがよく知られている。これらはほぼ平らなフェルミ面のネスティングによって引き起こされる。TMTSF の場合、隣接する二量体間の距離として定義された単位胞の長さ a を用いると、この波数は

$$2k_F = \pi/a = 2\pi/2a. \quad (1.3)$$

という関係を満たすことがわかる。CDW または SDW 状態になると、フェルミレベルにギャップが開き、金属絶縁体転移が起こる。この 1 粒子ギャップの大きさは、いろいろな輸送係数の測定から調べることができる。

CDW 状態は周期的な格子歪みを伴った電荷密度波であり、その波数が $2k_F$ である。この状態は電子格子相互作用を通して、格子と結合した電子によって作られている。このため、CDW の形成によって電子と格子のスペクトルは激しく変形される。実験的には CDW は種々の構造測定、すなわち X 線、中性子散乱、走査型トンネル顕微鏡 (STM) 実験など

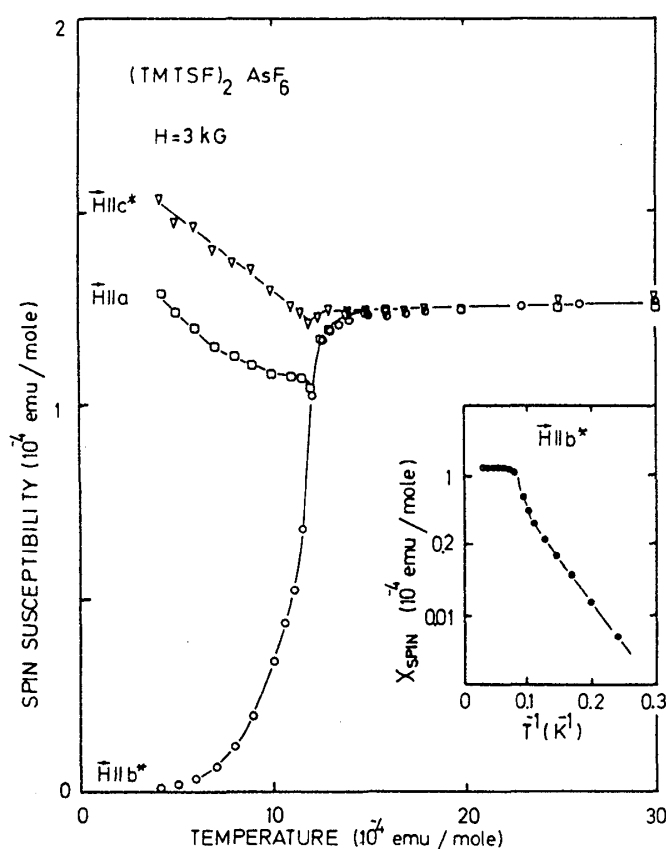


Figure 1.7: ($H = 3\text{kOe}$) の磁場下での単結晶 $(\text{TMTSF})_2\text{AsF}_6$ のスピン帯磁率の温度依存性。 b^* , a 軸および c^* 軸はそれぞれ 12K 以下での SDW 相の容易軸、中間軸、難易軸方向を表す。文献 [16] から転載。

によって確かめることができる。

一方、低次元金属で電子間相互作用が十分強いと、SDW 状態が実現する。これは波数 $2k_F$ を持つ上向きスピンの密度波と下向きスピンの密度波が、ちょうど位相が π だけずれて生じたものである。この場合、電荷密度(つまり上向きスピンと下向きスピンの密度の合計)は一様であり、スピン密度(つまり上向きスピン密度から下向きスピン密度を引いたもの)は $2k_F$ の周期で変調している。SDW 状態は異方性を示す帯磁率(図 1.7)で確かめることができる [16]。また核磁気共鳴(NMR)ではスピン密度の精密な空間依存性を明らかにすることができる。

しかし $(\text{TMTTF})_2X$ の示す $2k_F$ 不安定性に関しては、前節で述べた $4k_F$ の電荷局在を考慮して議論しなくてはならない。電荷局在の結果、系はスピン系となる。 T_p 以下で $4k_F$ 電荷ギャップ Δ_p が存在すると、生き残った自由度は電子スピンだけとなる。この場合、二量体当たり 1 コずつ局在した電荷があり、基底状態には以下の 2 つの可能性がある。

1. スピンの反強磁性的 (AF) 秩序状態 ($\cdots, \uparrow, \downarrow, \uparrow, \downarrow, \cdots$)

— $(\text{TMTDSF})_2\text{PF}_6$ や $(\text{TMTTF})_2\text{Br}$ の場合

2. スピンが一重項 (シングレット) の対を形成した、非磁性の基底状態 (スピンパイエルス (SP) 転移)

— $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ の場合

理論計算 [17] によると、電荷ギャップ Δ_p が減少するにしたがって主な不安定性は SP から $2k_F\text{SDW}$ へと変わっていく。これは圧力を加えたときの $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ や $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ の振舞と合致する。一方 $(\text{TMTSF})_2\text{X}$ では電荷の局在がない。 $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ の温度と圧力を変えたときの相図については、今後の節で議論する。

1.2.4 統一された相図

$(\text{TMTCF})_2\text{X}$ 塩グループに属する化合物の実験結果をまとめてみると、図 1.8 に示したような統一的相図が得られる [18]。さらに $(\text{TMTSF})_2\text{X}$ に対して、磁場の効果も含めた実験的相図も最近得られている [19]。

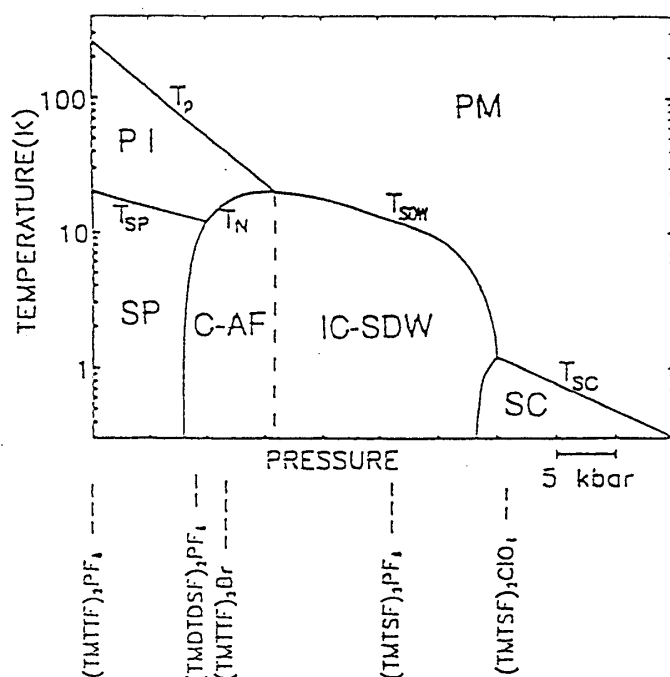


Figure 1.8: $(\text{TMTCF})_2\text{X}$ 化合物の統一的相図。文献 [18] から転載。

1.3 $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ の電荷状態に関する実験

1979年に $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ で有機伝導体としては初めて超伝導体が発見された[20]ことは、つとに知られている。この発見は、この分野での実験、理論両面での研究をますます盛んにした。この物質の基底状態の研究は主に、超伝導相の原因の解明や、常圧下で実現するSDW相の理解に向けられてきた。

常圧下で $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ は $T_N = T_{\text{SDW}} \simeq 12\text{K}$ でフェルミ面のネスティングによる金属絶縁体転移を示す[21]。スピン帯磁率の異方性やNMR、 μSR による反強磁性共鳴の測定から、この物質の磁氣的性質が調べられた[22]。H-NMRの実験によると、SDW変調は波数(0.5, 0.20-0.24, 0-0.06)を持ち、大きさは $0.08\mu_B$ である[23]。このSDWの波数は、バンド計算から得られるネスティングベクトルとよく一致している[24]。

静水圧をかけることによって、SDW転移は抑制される。これはフェルミ面の曲がりが増大し、その結果ネスティング条件が破れたものと考えられる。 T_{SDW} は圧力とともに減少し、12kbarで $T_C = 0.9\text{K}$ の超伝導転移がおこる[20]。いろいろな圧力条件で T_C と T_{SDW} を測定することにより、図1.9に示したような $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ の相図が得られている[25]。

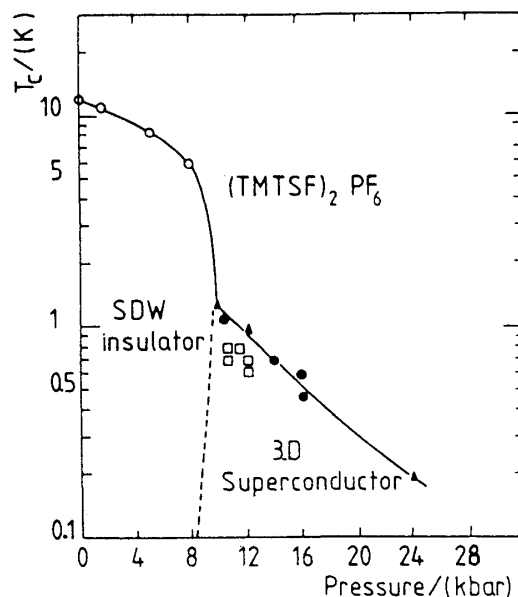


Figure 1.9: 温度と圧力の関数としての $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ の相図。文献[25]から転載。

1.3.1 $2k_F$ CDW のゆらぎ

(TMTSF) $_2$ PF $_6$ における金属相から絶縁相である SDW 状態への転移をもっと詳しく調べると、 T_{SDW} より高い温度において SDW や、さらに SDW-CDW 共存のゆらぎが存在することが実験的に確かめられている。(TMTSF) $_2$ PF $_6$ や AsF $_6$ に対する X 線散漫散乱の実験 [26] では、 $2k_F$ CDW 不安定性によって引き起こされる TMTSF 積層構造の変位不安定性と思われる弱い $2k_F$ 散漫線が見られた。しかし、この不安定性は TMTSF-DMTCNQ のように低温で発達することではなく、30K 以下で消失する。

しかし、1996 年に Pouget と Ravy は 30K 以下で $2k_F$ の構造的ゆらぎが消失することは必ずしも CDW の応答ができなくなることを意味するものではないと主張した [6]。彼らは実際に (TMTSF) $_2$ PF $_6$ の T_{SDW} 以下の温度で、電子による CDW の存在を確かめたと主張した。

1.3.2 基底状態における SDW と CDW の共存

(TMTSF) $_2$ PF $_6$ の金属絶縁体転移はパイエルズ転移と同様のメカニズムで起こるので、通常は 2 次転移であると期待される。しかし電気抵抗の振舞いからは弱い 1 次転移である可能性が高い [27]。さらに SDW に凝縮した状態全体の動的質量が増大していることも見出されているが [5]、これは純粋な SDW では考えられないことである。これらの実験結果は SDW と格子が何らかの形で結合していることを示唆している。これは T_{SDW} 以上の温度での CDW 不安定性と関連している可能性がある。

このような結合の性質を調べるために Pouget と Ravy は (TMTSF) $_2$ PF $_6$ に対して X 線散漫散乱の実験を T_{SDW} (12K) の上下の温度で行ない、10.7K 以下で $2k_F$ の散漫線を見出した。指標付け解析の結果によると、この変調構造の波数は q_1 と q_2 であることがわかった。このような変調 q_1 のベクトルは NMR の実験で求められた q_{SDW} と一致するので、 q_1 と q_2 はそれぞれ 1 次元方向の $2k_F, 4k_F$ のベクトルに対応すると考えられる。図 1.10 に q_1 と q_2 の衛星反射強度の温度依存性を示す。この強度は 13K と 13.5K の間で急激に消えるが、この温度はそれまで知られていた T_N より約 1K 高い。著者らは、このようなずれは X 線照射による欠損によって引き起こされる可能性があるとして述べている。

さらに驚くべきことに、電子密度が $2k_F$ で変調するだけでなく、X 線の構造因子は有機分子変位の変調によるものでは説明できないということになった。つまり基底状態では $2k_F$ SDW と電子系のみによる (格子変形を伴わない) $2k_F$ CDW とが共存していることになる。CDW による電子密度の変調の大きさは、分子 1 つ当たり約 0.1 電子と評価される。これは SDW の振幅が $0.08\mu_B$ であることに匹敵する大きさである。それにも関わらず、このような状態は今まで実験的にも理論的にも調べられてはいなかった。

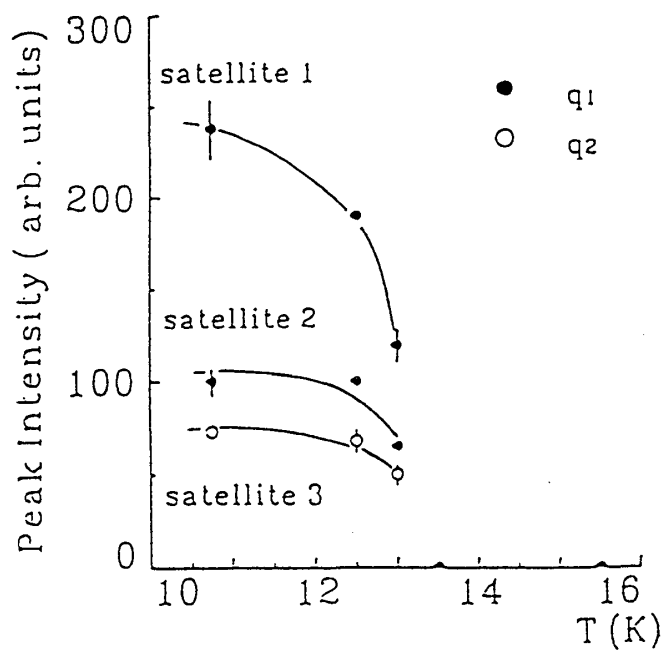


Figure 1.10: 1, 2, 3 と名付けた X-ray 衛星反射の温度依存性。衛星反射 1 と 2 は波数 $\vec{q}_1 \simeq 2k_F$ のものであり、衛星反射 3 は波数 $\vec{q}_2 \simeq 4k_F$ である。文献 [6] から転載。

この修士論文の目標は、擬 1 次元 $1/4$ 充填伝導体での上記のような共存状態について、理論的描像を確立しようということである。我々の手法と結果に移る前に、類似の問題についての今までの理論について手短にまとめておこう。

Chapter 2

擬 1 次元伝導体の電子状態に関する理論・レビュー

アニオン配置による微小な二量体化を持つ擬 1 次元 1/4 充填伝導体の基底状態を解析する方法はいくつか考えられる。まず、系を実効的に 1/2 充填と考えるか、1/4 充填のまま考えるかの 2 通りの考え方がある。ここでは最初に 1/2 充填の系を扱ったやや古典的な仕事を概観し、そのあとで二量体化を考えた場合と考えない場合の 1/4 充填の理論について述べることにする。ここで紹介する仕事はすべてハバード型ハミルトニアンに関するものである。多くの擬 1 次元伝導物質では、伝導電子のバンドが非常に狭いので ((TMTSF)₂PF₆ で 1eV のオーダー)、クーロン相互作用が重要な役割を果たしていると考えられる [28]。このためハバードハミルトニアンを用いることが正当化される。

2.1 擬 1 次元 1/2 充填系の基底状態

電荷秩序とスピン秩序を両方扱った論文の代表的なものとして、ここでは Cabib と Callen によるものを紹介する [29]。彼らはオンサイトクーロン相互作用 U に加え、最近接相互作用 V を考慮し、 V が十分大きければ電荷秩序状態への転移が実際に起こることを示した。彼らのハミルトニアンは

$$\begin{aligned} \mathcal{H} = & -t \sum_{j,\sigma} (c_{j\sigma}^\dagger c_{j+1\sigma} + h.c) \\ & + U \sum_j n_{j\uparrow} n_{j\downarrow} \\ & + V \sum_j n_j n_{j+1}, \end{aligned} \quad (2.1)$$

である。ここで σ はスピン、 $n_{j\sigma}$, $c_{j\sigma}^\dagger$ ($c_{j\sigma}$) はそれぞれ j 番目の単位格子中のスピン σ の電子に対する数演算子と生成 (消滅) 演算子である。スピン秩序と電荷秩序両方を考えて、彼らはハートレー・フォックの自己無撞着な解を調べ、ハミルトニアンに含まれる (U, V) の

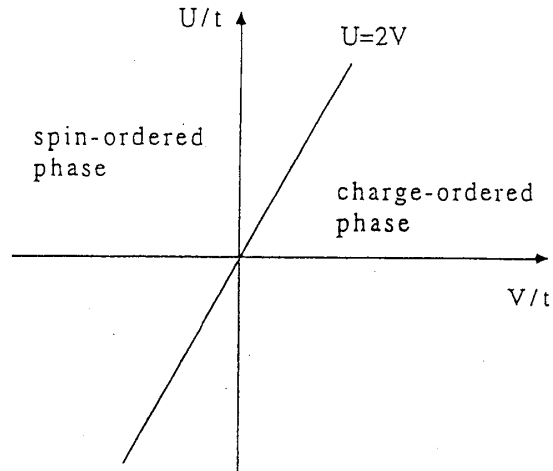


Figure 2.1: 転移温度以下の温度領域における、 $U/t - V/t$ の関数としてのスピン秩序-電荷秩序の相図。 $U = 2V$ の線が反強磁性相と電荷秩序相との1次相転移の境界である。原図は参考文献 [29] から採った。

パラメータに関して CDW と SDW の実現条件を調べた。得られた低温での相図を図 2.1 に示す。彼らの結果は以下のようにまとめられる。(i) CDW と SDW は U/t と V/t のどのような値のときも共存することはない。(ii) $U = 2V$ の線が2相の境界であり1次転移である。(iii) $U > 2V$ の領域では SDW が安定であり、 $U < 2V$ の領域では CDW が安定である。(iv) $U = 2V$ の線上では両者は縮退する。彼らは2種類の秩序に対する BCS 型のギャップ方程式を導出し、それが $U = 2V$ の線上で同一になることを示した。つまり2相は同じ転移温度を持ち、温度が下がっても縮退し続けるのである。1/2 充填のこの枠組の範囲内では、2つの秩序変数を同時に持つことはない。つまり CDW と SDW の共存相は不可能なのである。

2.2 擬1次元 1/4 充填系の基底状態

秩序変数を調べる以外に、応答関数のふるまいを調べるのがもう一つの方法である。式 2.1 に示したような1次元 1/4 充填の拡張ハバードモデルを用いて、Hirsch と Scalapino[30] はモンテカルロ・シミュレーションによって電荷密度とスピン密度の応答関数を調べた。彼らは、クーロン相互作用によって $2k_F$ 電荷密度の不安定性が急激に抑制され、 $2k_F$ SDW 不安定性が成長することを見出した。さらに $4k_F$ CDW と $2k_F$ CDW は、どんな温度領域でも共存しないが、最近接相互作用 V を加えると $4k_F$ の特異性が現れることを示した。この結果は (TTF-TCNQ) のような擬1次元有機伝導体に対する X 線 $4k_F$ 散漫散乱がクーロン相互作用によるものではないかという考え方を支持している。

これらの仕事では、モデルに電子格子 (e-ph) 相互作用の効果はあらわには取り入れられていなかった。Ung ら [31] は CDW に加えて、格子変位によるボンド秩序波 (BOW) と

Table 2.1: 1/4 充填の系において起こり得る周期 $2k_F$ のボンド変位と電荷変調。1 本線のボンドは変位のないボンドを表し、2 重線のボンドは短いボンド、点線のボンドは長いボンドをそれぞれ表す。原図は参考文献 [31] から採った。

<i>Period 4</i>	<i>Period 4</i>	<i>Period 2</i>	MEM(TCNQ) ₂
$2k_F$ BOW1 	$2k_F$ BOW2 	$4k_F$ BOW 	BOW
$2k_F$ CDW1 	$2k_F$ CDW2 	$4k_F$ CDW 	CDW

いうものを考え、1/4 充填の系の $2k_F$ と $4k_F$ 不安定性について再考した。(ただし彼らは、SDW の長距離秩序は純粋な 1 次元系では実現しないということから、SDW の可能性は考えなかった。) $2k_F$ 周期の変調として、BOW と CDW は互いの位相の違いによって 2 通りの仕方で共存する。この様子は表 2.1 に示した。彼らが考えたハミルトニアンは

$$\begin{aligned}
 \mathcal{H} = & \sum_j (t - \alpha(u_{j+1} - u_j)) (c_{j\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + h.c) \\
 & + U \sum_j n_{j\uparrow} n_{j\downarrow} + V \sum_j n_j n_{j+1} \\
 & + \frac{K_1}{2} \sum_j (u_{j+1} - u_j)^2 \\
 & + \beta \sum_j n_j v_j + \frac{K_2}{2} \sum_j v_j^2
 \end{aligned} \tag{2.2}$$

である。ここで u_j は j 番目の分子の平衡位置からの変位を表し、 v_j は分子内の振動モードに対応する。 α と β はそれぞれ、電子-格子 (e-ph) と電子-分子振動 (e-mv) 相互作用に対する結合定数であり、 K_1 と K_2 はそれぞれの弾性定数である。彼らは 8、12、16 サイトの 1 次元系 (周期境界条件) について厳密対角化を行ない、以下のような結果を得た。

(i) U が増加するにつれて、基底状態は $2k_F$ の変調を持つ BOW1 から BOW2 へ移行していく。(ii) いろいろな e-mv 結合と e-ph 結合の大きさの場合に $2k_F$ BOW1 と $2k_F$ CDW1 が共存するのと同様に、 $2k_F$ BOW2 と $2k_F$ CDW2 も共存する。(iii) V を 0 から増加していくと、 $2k_F$ BOW2 と $2k_F$ CDW2 に加えて $4k_F$ BOW の成分が出現する。

Penc と Mila[32] は 1/4 充填の 1 次元二量体化ハバードモデルにおいて見られる電荷励起のギャップを定量的に評価した。これは、いくつかの物質において見られる低温での電

気抵抗の熱励起型の温度依存性を解釈する目的で行なわれた。この振舞いの解析から、逆に物質中のクーロン斥力の大きさを評価することができる。彼らは二量体化について2つのモデルを考えた。1つは飛び移り積分が大小交替になっている場合と、もう一つはオンサイト・エネルギーが大小交互になっている場合である。前者は Bechgaard 塩に当てはまる。このモデルは次の章で我々が用いるモデルである。後者は TMTSF と TMTTF 分子が交互に積層した物質に当てはめられる。これら2つの二量体化のモデルは図 2.2 に模式的に示した。ここでは飛び移り積分が大小交替になっているという第1のモデルに関する結果を示すにとどめる。

ハミルトニアンは、

$$\begin{aligned}\mathcal{H} = & -t_1 \sum_{j, \text{even}, \sigma} (c_{j\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + h.c) \\ & -t_2 \sum_{j, \text{odd}, \sigma} (c_{j\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + h.c) \\ & + U \sum_j n_{j\uparrow} n_{j\downarrow}\end{aligned}\quad (2.3)$$

である。図 2.3 に小さい系の厳密対角比によって得られたギャップの大きさの評価を示す。

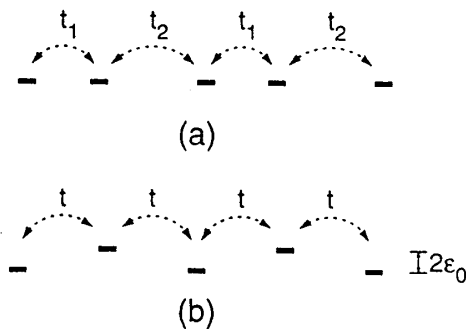


Figure 2.2: (a) 飛び移り積分が大小交替 (t_1 と t_2) になっている場合と、(b) オンサイト・エネルギーが大小交互になっている (エネルギー差が $2\epsilon_0$) 場合、2つのモデルの模式図。参考文献 [32] から転載。

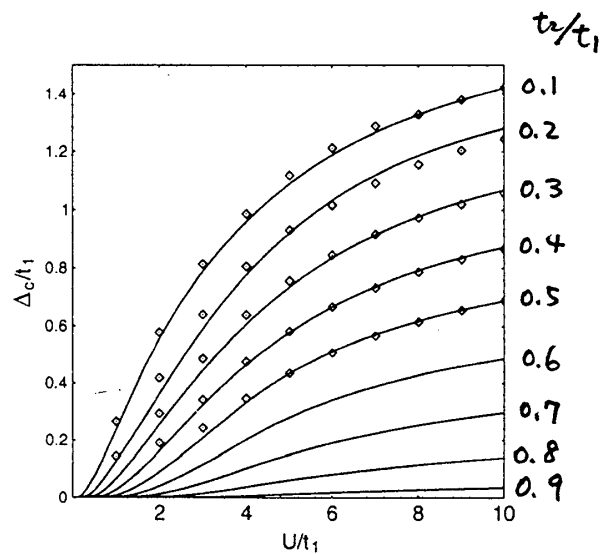


Figure 2.3: $t_2/t_1 = 0.1 - 0.9$ の場合の電荷ギャップの評価。各線は、上から下へ t_2/t_1 が 0.1 ずつ異なる値に対する結果である。参考文献 [32] から転載。

Chapter 3

SDW・CDW 共存の理論

1.3.2 節で示したように、Pouget と Ravy の実験は $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ の基底状態において $2k_F$ SDW と $2k_F$ CDW が共存していることを強く示唆している。しかし第 2 章で議論したように、今までの理論はこのような共存を説明することができない。我々は、この現象を説明する初の試みとしての理論を 2 つ提唱する。まず共存に関する一般的な議論を展開し、その後の節で共存が可能な 2 つのモデルに対する平均場近似の計算を示す。我々は、各二量体の内部自由度を考慮することが本質的に重要であることを見出した。

TMTSF 分子の伝導鎖方向に沿ってもともと二量体化が存在するために、この擬 1 次元伝導体の単位胞中には二量体を形成する 2 つのサイトがある。この 2 つのサイトを α と β と書くことにする。この二量体化のために単位胞の大きさが 2 倍になり、元来 1/4 充填の $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ のバンドは、実効的に 1/2 充填になっている。この新しい単位胞の長さを a と書くことにする。すると a は隣り合う二量体の間の距離に対応する。実験的観点 [1] と理論的観点 [30] の両方から示唆されているように、電荷密度とスピン密度の応答関数の特異性は、波数 $q = 2k_F$ と $q = 4k_F$ 両方で生じる。系はホールの描像でいって 1/4 充填なので、

$$2k_F = \pi/a = 2\pi/2a, 4k_F = 2\pi/a. \quad (3.1)$$

という関係がある。従って基底状態のすべての可能性つまり $2k_F$ SDW, $2k_F$ CDW、 $4k_F$ CDW およびそれぞれの共存状態などを考えるには、各単位胞中の α と β サイトの上向きスピンおよび下向きスピンの密度両方の期待値をオーダーパラメータとして考える必要がある。

j 番目の単位胞に対して、 α と β サイトの上向きスピンおよび下向きスピンの密度を以下のように定義する。

$$\langle n_{\alpha j \uparrow} \rangle = n_\alpha + (-1)^j S_{\alpha \uparrow}, \quad (3.2)$$

$$\langle n_{\alpha j \downarrow} \rangle = n_\alpha + (-1)^j S_{\alpha \downarrow}, \quad (3.3)$$

$$\langle n_{\beta j \uparrow} \rangle = n_{\beta} + (-1)^j S_{\beta \uparrow}, \quad (3.4)$$

$$\langle n_{\beta j \downarrow} \rangle = n_{\beta} + (-1)^j S_{\beta \downarrow}. \quad (3.5)$$

ここで n_{α} (n_{β}) は、それぞれ α (β) サイト上の平均密度を表し、 $S_{\alpha\sigma}$ ($S_{\beta\sigma}$) は波数 $2k_F$ を持った密度波成分を表す。これらのオーダーパラメータを用いて平均場近似を行なうと、新しい還元ブリルアン・ゾーンは波数 $-\pi/2a \leq k \leq \pi/2a$ のものとなる。

系が 1/4 充填であるという条件があるので、電子密度の合計は

$$n_{\alpha} + n_{\beta} = 0.5. \quad (3.6)$$

という式を満たさなければならない。

$2k_F$ SDW と $2k_F$ CDW の共存相の可能性は、最初 Overhauser によって考案された [33]。彼は上向きスピンと下向きスピンの 2 つの密度波を

$$\rho_{\uparrow}(x) = \bar{\rho} - A \sin(2k_F x - \theta), \quad (3.7)$$

$$\rho_{\downarrow}(x) = \bar{\rho} + A \sin(2k_F x + \theta), \quad (3.8)$$

のように考えた。ここで $\bar{\rho}$ は各スピンの平均密度である。 $\theta = 0$ の場合、この状態は純粋な SDW 状態を表し、 $\pi/2$ のとき純粋な CDW 状態となる。それ以外の場合は CDW と SDW の混ざった変調となるが、これが Pouget と Ravy[6] の見出した状態である可能性がある。我々はこのような $2k_F$ SDW と $2k_F$ CDW の共存相が可能であることを微視的に説明するような理論を探索した。具体的には (U, K) モデルと (U, V) モデルという 2 つの異なったモデルを用いて、1/4 充填の擬 1 次元伝導体を調べた。

3.1 (U, K) モデル

3.1.1 定式化

我々の第 1 番目のモデル [34] では、1 次元ハバードモデルのハミルトニアンを基礎に、少し変形したモデルを用いて絶対零度での平均場近似を行なった。用いたモデルは

$$\begin{aligned} H = & - t_a \sum_{j=1}^N \sum_{\sigma=\uparrow, \downarrow} (c_{\alpha j \sigma}^{\dagger} c_{\beta j \sigma} + h.c.) \\ & - t_b \sum_{j=1}^N \sum_{\sigma=\uparrow, \downarrow} \{1 + (-1)^j \frac{\delta}{a}\} (c_{\alpha j \sigma}^{\dagger} c_{\beta j+1 \sigma} + h.c.) \\ & + U \sum_{j=1}^N (n_{\alpha j \uparrow} n_{\alpha j \downarrow} + n_{\beta j \uparrow} n_{\beta j \downarrow}) \end{aligned}$$

$$+ K \left(\frac{\delta}{a} \right)^2 \times 2N \quad (3.9)$$

である。ここでサイト数は $2N$ 個あり、 σ はスピンを示す。 $n_{\alpha j \sigma}$ と $c_{\alpha, \beta j \sigma}^\dagger (c_{\alpha, \beta j \sigma})$ は、それぞれスピン σ を持つ j 番目の単位胞中の α, β サイトでの数演算子と生成 (消滅) 演算子である。ここで t_a は 1 つの単位胞内にある 2 つのサイト間の飛び移り積分であり、 t_b は 2 つの二量体間の飛び移りを示す。つまり t_a は二量体内飛び移り積分であり、 t_b は二量体間ということになる。二量体化は $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ のアニオン鎖によるものであり、その結果 t_a と t_b の値が少し異なったものになっている。ここでは数値的に評価された値 [35]

$$\frac{t_a}{t_b} = 1.2. \quad (3.10)$$

を用いる。

U はオンサイト・クーロンエネルギーであり α サイト β サイトで同じ値を持つものとする。元のハバードモデルとの重要な違いは δ/a という部分である。これは $2k_F$ CDW が生じた場合の分子配置の変化によって生じるとした。変数 K は格子の弾性定数であり、CDW によって格子が歪むとエネルギーが増加することをあらわしている。図 3.1 に純粋な SDW 状態と、ここで考える共存状態を模式的に示した。図 3.1(a) は $\delta/a = 0$ の場合の純粋な SDW 状態を示し、図 3.1(b) は δ/a が 0 でない場合の共存相を示す。 δ/a のために、二量体間飛び移り積分 t_b が $t_b(1 + (-1)^n \delta/a)$ と変化する。図では δ/a の効果が直観的にわかるように、二量体の位置の移動として描かれている。つまり二量体がさらに二量体化したものである。しかし後で議論するように、分子の変位を伴わない他の効果によって、同じような t_b の変化が生じることがある。

図 3.1(c) と図 3.1(d) には共存相での電荷密度とスピン密度の空間依存性を示してある。 ρ_\uparrow と ρ_\downarrow が純粋な SDW 状態のときと比べてずれているために、全電子密度は図 3.1(c) のように $2k_F$ の波数を持って空間的に振動することになる。

実験結果から、 $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ では $4k_F$ の電荷密度波は生じていないと思われるので、式 (3.2) – (3.5) 中の n_α と n_β は $\bar{n} = n_\alpha = n_\beta = 0.25$ と置いた。平均場近似の計算では、式 (3.2) – (3.5) に現れる 5 つのオーダーパラメータ、すなわち $S_{\alpha\uparrow}, S_{\alpha\downarrow}, S_{\beta\uparrow}, S_{\beta\downarrow}$ と δ/a を変化させて自由エネルギーを最小にするようにする。前半の 4 つのオーダーパラメータは運動量空間で以下のように書き表すことができる。

$$S_{\alpha\sigma} = \sum_{-\pi/a < k < \pi/a} \langle \alpha_{k\sigma}^\dagger \alpha_{k+Q\sigma} \rangle, \quad (3.11)$$

$$S_{\beta\sigma} = \sum_{-\pi/a < k < \pi/a} \langle \beta_{k\sigma}^\dagger \beta_{k+Q\sigma} \rangle, \quad (3.12)$$

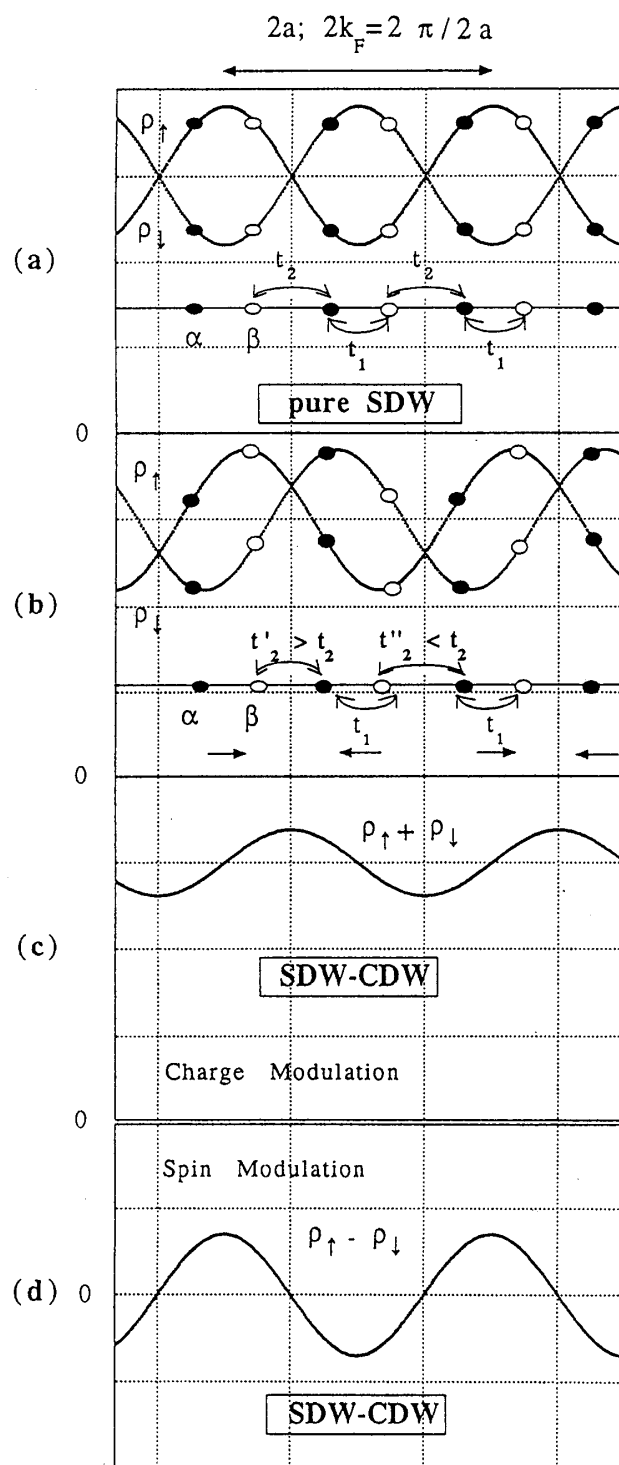


Figure 3.1: 純粋な SDW 相と共存相での上向きスピンの密度波と下向きスピンの密度波。二量体がさらに二量体化するために ($\delta/a \neq 0$)、二量体間のボンドが短くなるとする。このようにして短くなったボンドを太線で示し、長くなったボンドを点線で示してある。

ここで $\alpha_{k\sigma}$ と $\beta_{k\sigma}$ は以前定義した $c_{\alpha j\sigma}$ と $c_{\beta j\sigma}$ のフーリエ変換であり、1/4 充填に対応して $Q = 2k_F = \pi/a$ である。このオーダーパラメータは α サイト、 β サイトそれぞれの上向きスピンと下向きスピンの波数 $2k_F$ の密度波の振幅を表している。これらのオーダーパラメータがあると、還元ブリルアンゾーンは波数 $-\pi/2a \leq k \leq \pi/2a$ の領域となる。

運動量空間での平均場ハミルトニアンは以下ようになる。

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_\uparrow + \mathcal{H}_\downarrow - \frac{U}{N} S_{\alpha\uparrow} S_{\alpha\downarrow} - \frac{U}{N} S_{\beta\uparrow} S_{\beta\downarrow} + K \left(\frac{\delta}{a} \right)^2 \times 2N, \quad (3.13)$$

ここで

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_\sigma = & \sum_{-\frac{\pi}{2a} < k < \frac{\pi}{2a}} \begin{pmatrix} \alpha_{k\sigma}^\dagger & \alpha_{k+Q\sigma}^\dagger & \beta_{k\sigma}^\dagger & \beta_{k+Q\sigma}^\dagger \end{pmatrix} \\ & \times \begin{pmatrix} 0 & \frac{U}{N} S_{\alpha-\sigma} & -t_a - t_b e^{ika} & -2t_b \frac{\delta}{a} e^{ika} \\ \frac{U}{N} S_{\alpha-\sigma} & 0 & 2t_b \frac{\delta}{a} e^{ika} & -t_a + t_b e^{ika} \\ -t_a - t_b e^{-ika} & 2t_b \frac{\delta}{a} e^{-ika} & 0 & \frac{U}{N} S_{\beta-\sigma} \\ -2t_b \frac{\delta}{a} e^{-ika} & -t_a + t_b e^{-ika} & \frac{U}{N} S_{\beta-\sigma} & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \alpha_{k\sigma} \\ \alpha_{k+Q\sigma} \\ \beta_{k\sigma} \\ \beta_{k+Q\sigma} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (3.14)$$

$S_{\alpha\sigma}$ や $S_{\beta\sigma}$ などのオーダーパラメータが 0 でない値をとると 1 粒子励起にギャップが開き、電子系のエネルギーを下げる。一方 (3.13) 式の第 3 項と第 5 項は有限の磁化によるエネルギー増加と格子変形によるエネルギー増加を表している。今、図 3.1(b) のような状況を考える場合、オーダーパラメータの間に

$$S_{\alpha\uparrow} = -S_{\beta\downarrow} \stackrel{\text{def}}{=} S_a, \quad (3.15)$$

$$S_{\beta\uparrow} = -S_{\alpha\downarrow} \stackrel{\text{def}}{=} S_b. \quad (3.16)$$

という関係がある。さらに、 $S_{\alpha\sigma}$ と $S_{\beta\sigma}$, すなわち (S_a, S_b) のすべての可能な値を調べる代わりに、我々は密度波の振幅を純粋な SDW のときの振幅と同じものと仮定し、波の位相のみを変化させてエネルギー最小となる状態を見出すこととした。純粋な SDW のときの振幅は $\delta/a = 0$, $S_a = S_b = S$ とおいて求められるが、その値を U の関数として図 3.2 に示した。この振幅の値を用いて、式 (3.7)-(3.8) にあるような位相 θ によって S_a と S_b をパラメトライズすることにした。これは Overhauser[33] の元々のアイディアに沿った取り扱いである。

n 番目の二量体の α サイトの位置は $x = na + a/4$ と書けるので、式 (3.2) のスピンの密度は

$$n_\uparrow \left(na + \frac{a}{4} \right) = \bar{n} - A(-1)^n \sin \left(\frac{\pi}{4} - \theta \right). \quad (3.17)$$

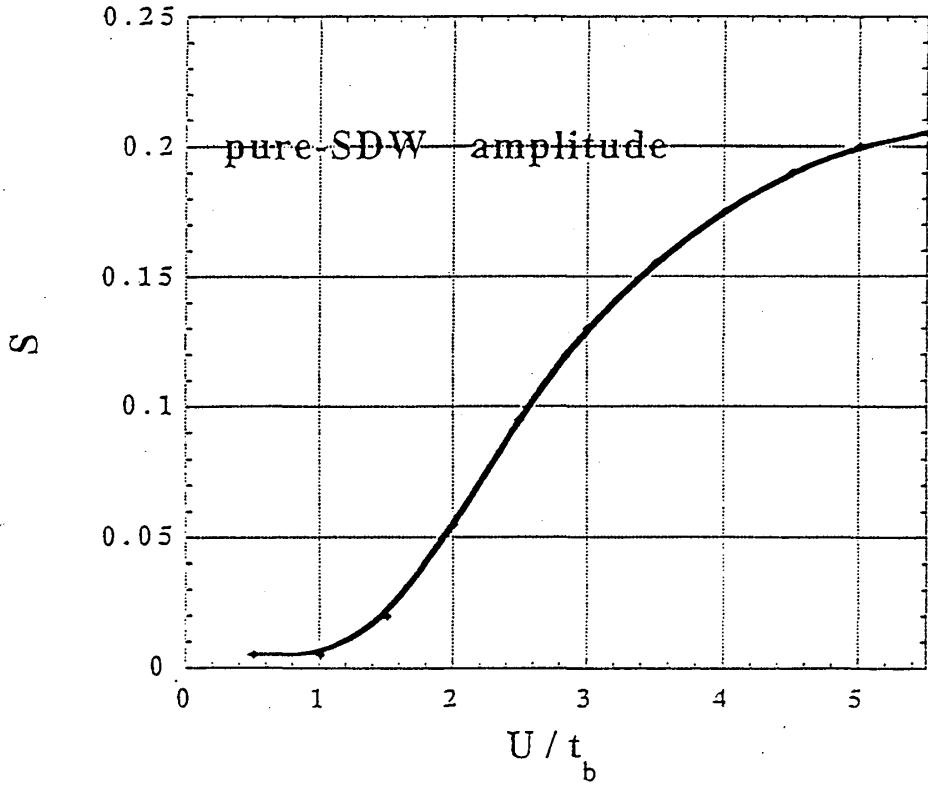


Figure 3.2: $\delta/a = 0$ の場合の、自己無撞着の値 S をオンサイトクーロンエネルギー U の関数として示したもの。

となる。(ここで $(2k_F = \pi/a)$ の関係を用いた。) このようにすると

$$\begin{aligned}
 S_a &= S_{\alpha\uparrow} \\
 &= (-1)^n \left\{ n_{\uparrow} \left((n+1)a + \frac{a}{4} \right) - n_{\uparrow} \left(na + \frac{a}{4} \right) \right\} \\
 &= \sqrt{2}A (\cos \theta - \sin \theta) \\
 &= S (\cos \theta - \sin \theta).
 \end{aligned} \tag{3.18}$$

となる。 β サイトについても同様に

$$n_{\uparrow} \left(na + \frac{3a}{4} \right) = \bar{n} - A (-1)^n \sin \left(\frac{3\pi}{4} - \theta \right) \tag{3.19}$$

という関係を用いて、

$$S_b = S_{\beta\uparrow} = S (\cos \theta + \sin \theta). \tag{3.20}$$

を得る。

我々はいろいろな U の値について、まず純粋な SDW 状態 (つまり $\delta/a = 0$ でかつ $S_a = S_b = S$ の場合) について S の値を決め、その値を止めたまま θ と δ/a に関してエネルギーが最小になるパラメータを求めた。 $\delta/a = 0$ という純粋な SDW 相の範囲では、 U が一定であるかぎり K の値を変えても SDW の振幅 S の値は変化しない。しかし δ/a が

0でない領域では、 S の値は変化し得る。我々は (S_a, S_b) の値を簡単化して計算しているのだが、以上のことを考えると、純粋なSDW相の境界については正しく求められることがわかる。また境界の近くで S の変化分がまだ小さい場合には、我々の結果はほぼ正しいものと考えられる。

3.1.2 結果

我々はまず、 U の値を $U/t_b = 2.5$ に固定した場合に、エネルギー最小を与える θ と δ/a の値を求めた。その結果得られた S_a, S_b と δ/a の値を、 K の値の関数として図3.3に示した。 $K_C/t_b \simeq 2.54$ という臨界値より大きい場合には $S_a = S_b$ つまり $\theta = 0$ を得た。これは基底状態が純粋なSDW状態であることを示している。弾性定数 K が小さくなると、格子は“柔らかく”なり、上向きスピン波と下向きスピン波は逆の方向に移動する。その結果図3.1の下部に模式的に示したようなSDW-CDW共存相が得られる。図3.3の結果は、相転移が2次転移であることを示している。すなわちオーダーパラメータが2相の境界で連続的な変化をしているからである。 U と K の両方の値を変化させて得られた相図を図3.4に示す。

3.1.3 議論とまとめ

得られた相図から考えて、パラメータ (U, K) が適当な領域にあれば、 $2k_F$ SDWと $2k_F$ CDWが共存すると結論される。

実験的な観点からこの結果の意味するところを考えてみよう。圧力を加えると t_b は大きな値を持つと考えられる。一方オンサイトクーロンエネルギーはそれほど劇的には変化しないと思われる。このため U/t_b の値は小さくなることになる。一方弾性定数 K の圧力変化はそれほど明らかではないが、圧力によって増加すると考えられる。同時に t_b も増加するので、 K/t_b の値の変化は明らかではない。しかし、いずれにせよ系は圧力によって図3.4の相図の左側に移動するのは確かである。さらにもし K/t_b がそれほど急激に大きくならないと仮定すると、系は境界に近付いていく。図3.4からわかるように、これは次のことを意味する。もし常圧下での $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ が共存相であるならば、圧力を加えることによってCDW変調の大きさは増大すると期待される。さらに、この共存によって T_{SDW} 以下で実験的に測定されているSDW全体の質量増加[36]も説明できるかもしれない。

PougetとRavyが格子変位型のCDWを見出したのか、格子変位を伴わない純粋に電子のみによるCDWを見出したのかについては未だ不明である[37]。

もし二量体の二量体化が存在しない場合には、我々の用いたオーダーパラメータ δ/a

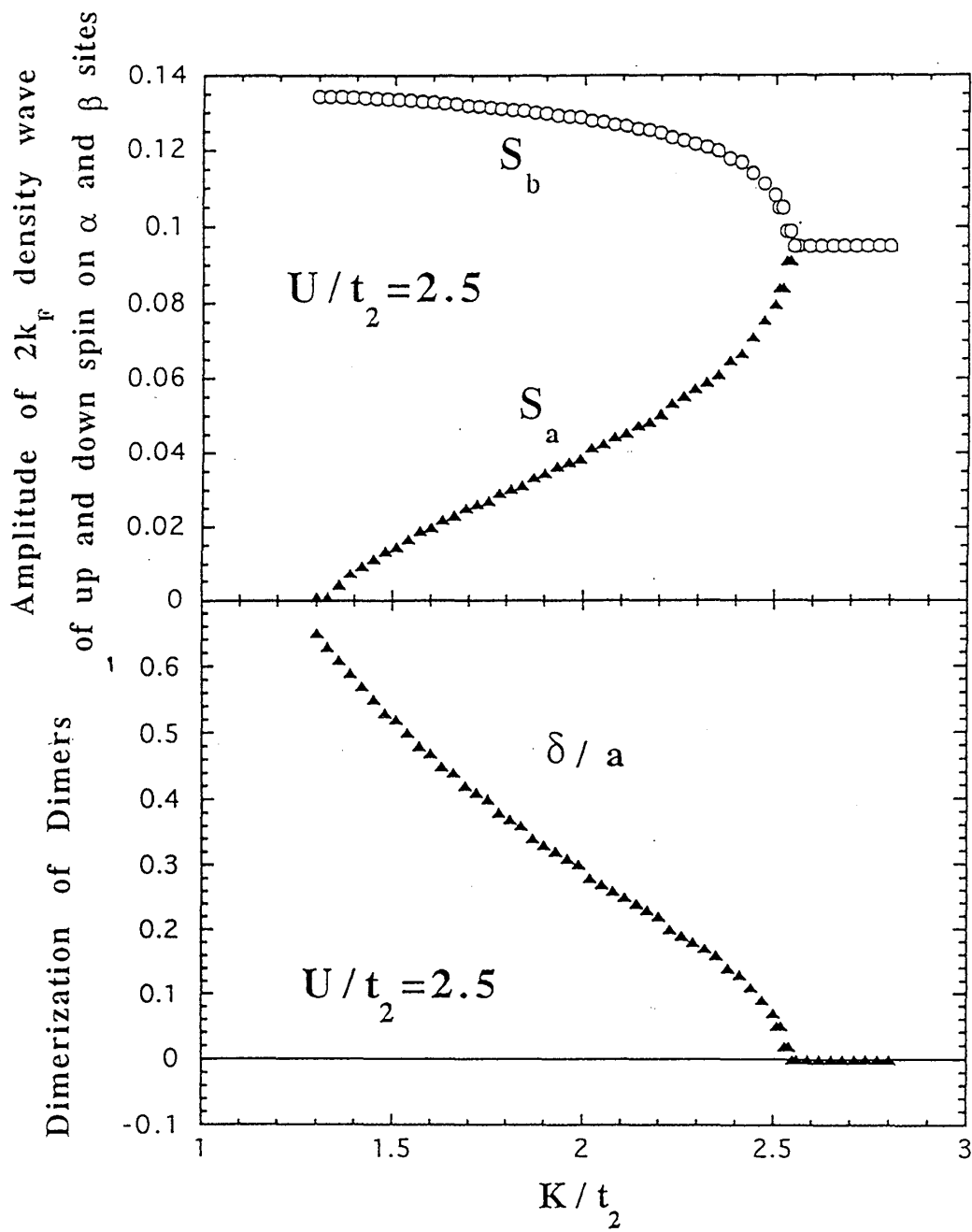


Figure 3.3: U が $U/t_b = 2.5$ の場合に、弾性定数 K の関数として求められた自己無撞着な S_a と S_b の値、および二量体の二量体化の大きさ δ/a_0 。

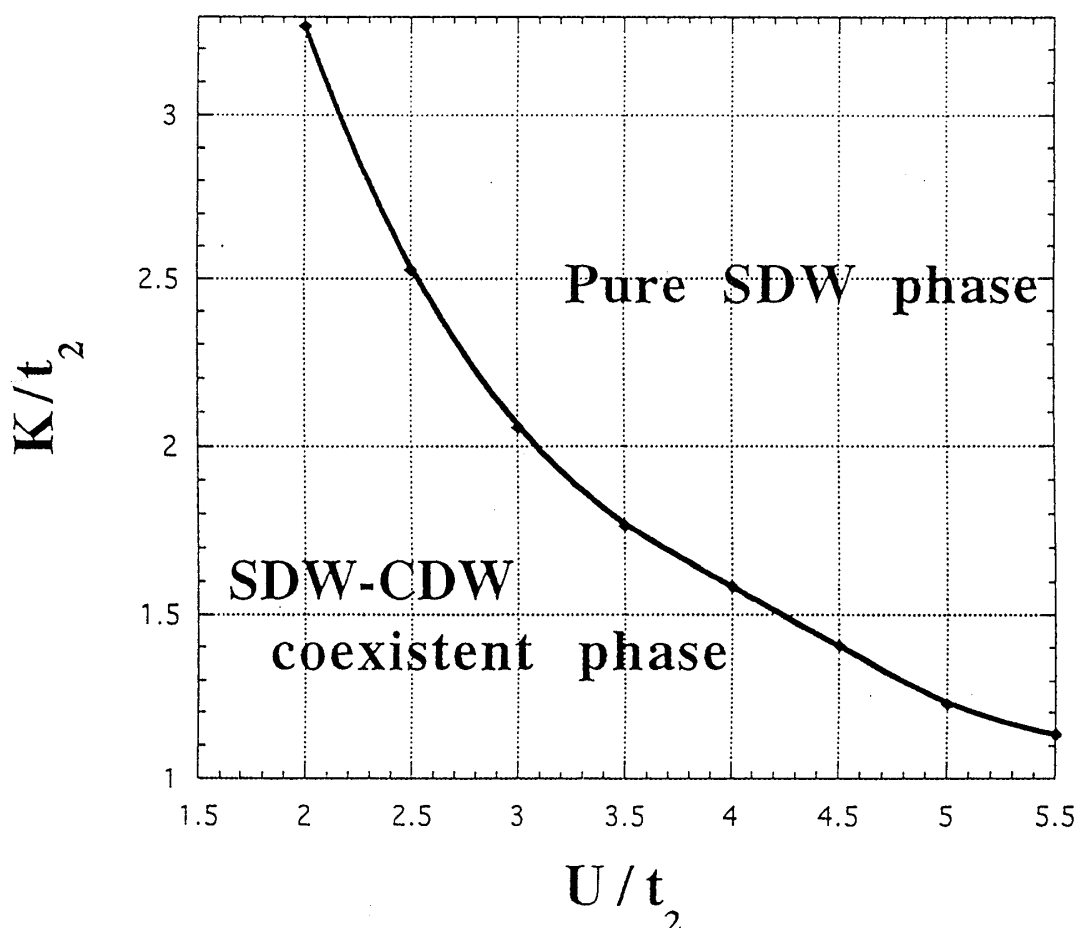


Figure 3.4: 平均場近似によって得られた相図。 U/t_b はオンサイトクーロンエネルギーを二量体間飛び移り積分 t_b で規格化したものであり、 K/t_b は同様に t_b で規格化した弾性定数である。

は、たとえば、二量体の回転のオーダーパラメータと解釈することができる。このような回転によっても実効的な飛び移り積分 t_b は変化を受けるので、ハミルトニアンは同じ形となるからである。このように解釈し直せば、格子変化を伴わない純粋な CDW との共存が理解できる。実際このような分子回転は“*libration*”と呼ばれ、いくつかの物質で存在するということが知られている。

3.2 (U,V) モデル

3.2.1 定式化

1 次元伝導体の基底状態を説明するためには、長距離クーロン相互作用の効果を無視することはできないという理論的な指摘が最近されている。高次元系と比較して、1 次元系ではクーロンポテンシャルの遮蔽が十分ではないということを考えれば、この議論は直観的に理解できる [28]。長距離クーロン相互作用を用いて成功した 1 つの例は、妹尾と福山によ

るものである [4]。彼らは最近接クーロン相互作用 V を考えることによって $(\text{TMTTF})_2\text{Br}$ で見出された反強磁性的な相を伴う電荷密度波を説明した。彼らの基底状態は $2k_F$ SDW と $4k_F$ CDW の共存状態であり、 $2k_F$ SDW と $2k_F$ CDW の共存は見出されていない。

我々は $1/4$ 充填 1 次元伝導体では、さらに長距離の次最近接斥力が重要であり、その結果 $2k_F$ SDW と $2k_F$ CDW の共存が (斥力の強さにもよるが) 実際に実現するというを示す [38]。まず以前に Hubbard[28] は $1/4$ 充填 1 次元伝導体において次最近接相互作用が無視できないということを示している。彼の評価では、TCNQ 鎖の次最近接相互作用は、遮弊を考えないとき 1.56eV であり、遮弊を考えると 0.35eV ということになった。これらの値は約 0.5eV のバンド幅に匹敵する大きさである。我々は、さらに二量体化の効果を考慮して、最近接クーロン相互作用の大きさとして、2つの値 V_a, V_b を考えることにした。

我々は以下のような $2N$ サイトを持つ 1 次元ハバードハミルトニアンを用いて絶対零度での平均場近似を調べた。

$$\begin{aligned}
 \mathcal{H} = & - t_a \sum_{j=1}^N \sum_{\sigma=\uparrow,\downarrow} (c_{\alpha j \sigma}^\dagger c_{\beta j \sigma} + h.c) \\
 & - t_b \sum_{j=1}^N \sum_{\sigma=\uparrow,\downarrow} (c_{\alpha j+1 \sigma}^\dagger c_{\beta j \sigma} + h.c) \\
 & + U \sum_{j=1}^N (n_{\alpha j \uparrow} n_{\alpha j \downarrow} + n_{\beta j \uparrow} n_{\beta j \downarrow}) \\
 & + V_a \sum_{j=1}^N n_{\alpha j} n_{\beta j} + V_b \sum_{j=1}^N n_{\beta j} n_{\alpha j+1} \\
 & + V_2 \sum_{j=1}^N (n_{\alpha j} n_{\alpha j+1} + n_{\beta j} n_{\beta j+1}), \tag{3.21}
 \end{aligned}$$

ここで $n_{\alpha, \beta j \sigma}$, $c_{\alpha, \beta j \sigma}^\dagger$ ($c_{\alpha, \beta j \sigma}$) は図 1 に示したような j 番目の単位胞中の α と β における、スピン σ の電子の数演算子と生成 (消滅) 演算子である。二量体を構成する 2つの TMTSF 分子に対応して、2種類のサイト α と β をあらわに用いている。 $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ のアニオン鎖による二量体化の効果は、飛び移り積分が 2種類の値 (t_a, t_b) を持つという点と、最近接クーロン相互作用についても 2種類の値 (V_a, V_b) を持つというところに現れている。前節の (U, K) モデルのときと同じように、 t_a は 1つの二量体に属する 2つのサイト間の飛び移り積分を表し、 t_b は隣合わせの二量体間の飛び移りを示している。同様に、 V_a は二量体内の最近接クーロン相互作用を表し、 V_b は二量体間のものを表す。変数 U はオンサイトクーロンエネルギーであり、 α, β サイト共に同じ値を持つこととした。次最近接クーロン相互作用は V_2 を用いて表され、 α サイト間と β サイト間では同じ値を持つ。

(t_a, t_b) の比については、数値的に評価された値 [35]

$$\frac{t_a}{t_b} = 1.1. \quad (3.22)$$

を用いる。 $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ の元来 1/4 充填のバンドは、この二量体化によって単位胞が 2 倍になるために、実効的に 1/2 充填になる。 a をこの新しい単位胞の長さとする。この長さは TMTSF 分子から成る二量体と二量体との間の距離に対応する。

平均場近似の計算結果を示す前に、可能な秩序状態、つまり純粋な SDW 状態および共存状態を分類しておこう。また、式 (3.2) - (3.5) で定義されたオーダーパラメータの満たすべき関係式もまとめておく。

1) 純粋な $2k_F$ SDW 基底状態

この状態は以下のようなオーダーパラメータの組で表される。

$$n_\alpha = n_\beta = 0.25, \quad (3.23)$$

$$S_{\alpha\uparrow} = -S_{\alpha\downarrow} = S_{\beta\uparrow} = -S_{\beta\downarrow} \neq 0. \quad (3.24)$$

もしオンサイトクーロン相互作用 U しかなく、二量体化のために実効的に 1/2 充填のハバードモデルになったとすると、基底状態は純粋な SDW 状態になるということが知られている。この場合 2 つの二量体内のスピンの向きを描くと、単純に $(\uparrow, \uparrow, \downarrow, \downarrow)$ と表される。

純粋な $2k_F$ SDW 状態とは異なる状態、つまり共存相を表すために、オーダーパラメータに関して以下の 2 通りの組を考える。

2) $2k_F$ SDW- $4k_F$ CDW 共存状態

$2k_F$ SDW に加えて $4k_F$ CDW が出現するためには

$$n_\alpha = 0.25 + \delta, \quad (3.25)$$

$$n_\beta = 0.25 - \delta (\delta \neq 0) \quad (3.26)$$

という条件が必要である。こうすることによって 1 つの二量体内での電荷の不均一が生じる。これは妹尾と福山 [4] によって考えられた状態である。電荷の変調は $4k_F$ CDW となっている。

さらに上向きスピンと下向きスピンの対称性を考えると、

$$S_{\alpha\uparrow} = -S_{\alpha\downarrow} \neq 0, \quad (3.27)$$

$$S_{\beta\uparrow} = -S_{\beta\downarrow} \neq 0 (|S_{\alpha\uparrow}| \neq |S_{\beta\uparrow}|). \quad (3.28)$$

という関係を満たしていることが期待される。この場合、鎖に沿った上向きスピンと下向きスピンの密度は図 3.5(a) に模式的に表現されている。上向きスピン密度から下向きスピン密度を引き算すれば $2k_F$ SDW のスピン密度変調が得られる。スピンモーメントの方向は $(\uparrow, \uparrow, \downarrow, \downarrow)$ のように書ける。ここで矢印の長さは、スピンモーメントの大きさを示している。妹尾と福山によって指摘されたように、この状態の極限は $(0, \uparrow, 0, \downarrow)$ である [4]。

3) $2k_F$ SDW- $2k_F$ CDW 共存状態

一方 $2k_F$ CDW と $2k_F$ SDW が共存するとき、条件は

$$n_\alpha = n_\beta = 0.25 \quad (3.29)$$

と

$$S_{\alpha\uparrow} = -S_{\beta\downarrow} \neq 0, \quad (3.30)$$

$$S_{\beta\uparrow} = -S_{\alpha\downarrow} \neq 0 (|S_{\alpha\uparrow}| \neq |S_{\beta\uparrow}|). \quad (3.31)$$

となる。2) と同様の変形を考えると、この場合図 3.5(b) に示されるような $2k_F$ CDW と $2k_F$ SDW を得る。スピンモーメントの向きは、 $(\uparrow, \uparrow, \downarrow, \downarrow)$ と表される。

$|S_{\alpha\uparrow}| = |S_{\beta\uparrow}|$ が成立する場合、この状態は 1) の純粋な $2k_F$ SDW 状態に帰着する。

これらのオーダーパラメータを用いて、我々は平均場近似を実行した。運動量空間での平均場ハミルトニアンは

$$\begin{aligned} \mathcal{H}^{\text{MF}} &= \mathcal{H}_\uparrow + \mathcal{H}_\downarrow \\ &- NU (n_\alpha^2 + S_{\alpha\uparrow}S_{\alpha\downarrow}) - NU (n_\beta^2 + S_{\beta\uparrow}S_{\beta\downarrow}) \\ &- NV_a \{4n_\alpha n_\beta + (S_{\alpha\uparrow} + S_{\alpha\downarrow})(S_{\beta\uparrow} + S_{\beta\downarrow})\} \\ &- NV_b \{4n_\alpha n_\beta - (S_{\alpha\uparrow} + S_{\alpha\downarrow})(S_{\beta\uparrow} + S_{\beta\downarrow})\} \\ &- NV_2 \{4n_\alpha^2 + 4n_\beta^2 - (S_{\alpha\uparrow} + S_{\alpha\downarrow})^2 - (S_{\beta\uparrow} + S_{\beta\downarrow})^2\}, \end{aligned} \quad (3.32)$$

となる。ここで

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_\sigma &= \sum_{-\pi/2a < k < \pi/2a} \begin{pmatrix} \alpha_{k\sigma}^\dagger & \alpha_{k+Q\sigma}^\dagger & \beta_{k\sigma}^\dagger & \beta_{k+Q\sigma}^\dagger \end{pmatrix} \\ &\times \begin{pmatrix} Un_\alpha & US_{\alpha-\sigma} & -t_a - t_b e^{-ika} & 0 \\ US_{\alpha-\sigma} & Un_\alpha & 0 & -t_a + t_b e^{-ika} \\ -t_a - t_b e^{ika} & 0 & Un_\beta & US_{\alpha-\sigma} \\ 0 & -t_a + t_b e^{ika} & US_{\beta-\sigma} & Un_\beta \end{pmatrix} \end{aligned}$$

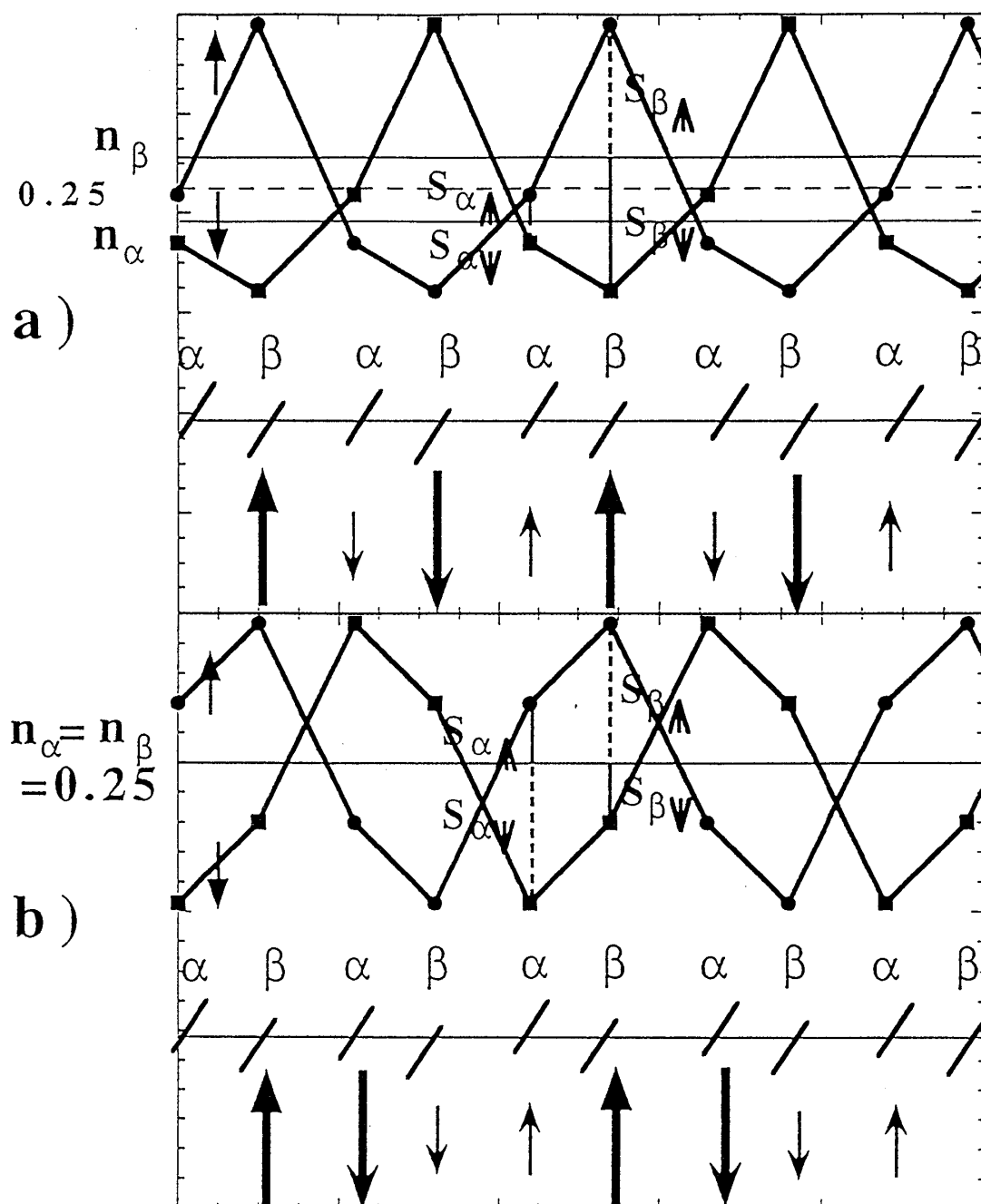


Figure 3.5: TMTSF 分子の α サイトと β サイトにおける上向きスピンの密度、および n_α , n_β を示す模式図。(a) $4k_F$ CDW と $2k_F$ SDW の共存状態。(b) $2k_F$ CDW と $2k_F$ SDW の共存状態。図 a) と b) それぞれの下の方に示された矢印の長さは、対応するサイトでの電子密度を表す。

$$\begin{aligned}
 & + \left(\begin{array}{cccc}
 2V_a n_\beta + 2V_b n_\beta & \times (S_{\beta\uparrow} + S_{\beta\downarrow}) & 0 & 0 \\
 \times (S_{\beta\uparrow} + S_{\beta\downarrow}) & 2V_a n_\beta + 2V_b n_\beta & 0 & 0 \\
 0 & 0 & 2V_a n_\alpha + 2V_b n_\alpha & \times (S_{\alpha\uparrow} + S_{\alpha\downarrow}) \\
 0 & 0 & \times (S_{\alpha\uparrow} + S_{\alpha\downarrow}) & 2V_a n_\alpha + 2V_b n_\alpha
 \end{array} \right) \\
 & + \left(\begin{array}{cccc}
 4V_2 n_\alpha & -2V_2 (S_{\alpha\uparrow} + S_{\alpha\downarrow}) & 0 & 0 \\
 -2V_2 (S_{\alpha\uparrow} + S_{\alpha\downarrow}) & 4V_2 n_\alpha & 0 & 0 \\
 0 & 0 & 4V_2 n_\beta & -2V_2 (S_{\beta\uparrow} + S_{\beta\downarrow}) \\
 0 & 0 & -2V_2 (S_{\beta\uparrow} + S_{\beta\downarrow}) & 4V_2 n_\beta
 \end{array} \right) \Bigg\} \\
 & \times \begin{pmatrix} \alpha_{k\sigma} \\ \alpha_{k+Q\sigma} \\ \beta_{k\sigma} \\ \beta_{k+Q\sigma} \end{pmatrix}. \tag{3.33}
 \end{aligned}$$

である。 $\alpha_{k\sigma}$ と $\beta_{k\sigma}$ は以前定義した $c_{aj\sigma}$ と $c_{bj\sigma}$ のフーリエ変換であり、1/4 充填なので $Q = 2k_F = \pi/a$ である。

系が 1/4 充填なので、自己無撞着方程式は式 (3.33) の行列 \mathcal{H}_σ の最小固有値に対応する固有関数だけを用いて書き表される。この固有関数を ${}^t(u_{1\sigma}, u_{2\sigma}, u_{3\sigma}, u_{4\sigma})$ と書くことにすれば、自由エネルギーを最小にするオーダーパラメータの値は以下の式によって決められる；

$$n_\alpha = \frac{1}{2N} \sum_{\sigma} \sum_{-\pi/2a < k < \pi/2a} (u_{1\sigma}^* u_{1\sigma} + u_{2\sigma}^* u_{2\sigma}), \tag{3.34}$$

$$n_\beta = \frac{1}{2N} \sum_{\sigma} \sum_{-\pi/2a < k < \pi/2a} (u_{3\sigma}^* u_{3\sigma} + u_{4\sigma}^* u_{4\sigma}), \tag{3.35}$$

$$S_{\alpha\sigma} = \frac{1}{N} \sum_{-\pi/2a < k < \pi/2a} (u_{1\sigma}^* u_{2\sigma} + u_{2\sigma}^* u_{1\sigma}), \tag{3.36}$$

$$S_{\beta\sigma} = \frac{1}{N} \sum_{-\pi/2a < k < \pi/2a} (u_{3\sigma}^* u_{4\sigma} + u_{4\sigma}^* u_{3\sigma}). \tag{3.37}$$

我々は、オーダーパラメータ ($n_\alpha, n_\beta; S_{\alpha\uparrow}, S_{\alpha\downarrow}; S_{\beta\uparrow}, S_{\beta\downarrow}$) に対する式 (3.34)-(3.37) が収束するまで、数値計算の反復を行なった。また上記の関係式から、電子密度に関する条件 $n_\alpha + n_\beta = 0.5$ (式 (3.6)) が自動的に満たされていることが簡単に示される。

3.2.2 結果

ここでは (V_a, V_b) の値の比を

$$V_b/V_a = 0.8. \tag{3.38}$$

に固定することにする。例として図 3.6 に、2) と 3) それぞれで示された条件を満たす ($S_{\alpha\uparrow}, S_{\beta\uparrow}; S_{\alpha\downarrow}, S_{\beta\downarrow}$) の自己無撞着な値を (V_a/t_b) の関数として示した。2) とは、 $2k_F$ SDW- $4k_F$ CDW の共存状態であり 3) とは、 $2k_F$ SDW- $2k_F$ CDW の共存状態である。図は $U/t_b =$

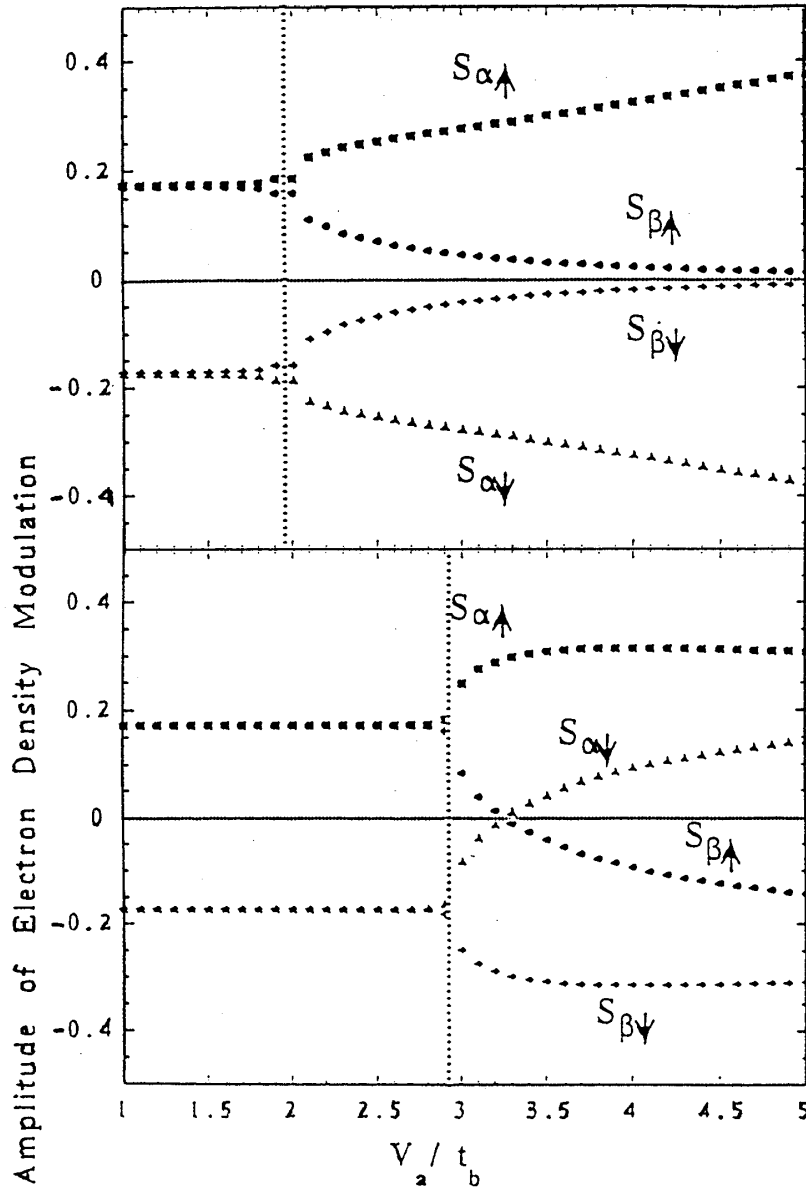


Figure 3.6: $(S_{\alpha\uparrow}, S_{\beta\uparrow}; S_{\alpha\downarrow}, S_{\beta\downarrow})$ の自己無撞着に決めた値を V_a/t_b の関数として示した。
 $U/t_b = 4.0$ 、 $V_b/V_a = 0.8$ 、 $V_2/V_a = 0.55$ の値を用いている。上半分の図のオーダーパラメータは 2) の条件を満たすもので、下半分の図のオーダーパラメータは 3) を満たす。

4.0かつ $V_2/V_a = 0.55$ の場合について示してある。さらに同じ U/t_b と V_2/V_a の値の場合の、2) と 3) に対応する自己無撞着な (n_α, n_β) の値についても図 3.7 に示した。 V_a/t_b が小さく、 $|S_{\alpha\uparrow}| = |S_{\beta\uparrow}|$ かつ $n_\alpha = n_\beta = 0.25$ が成立する領域では、純粋な $2k_F$ SDW 状態(つまり状態 1)として示したもの) が実現していることを示す。 V_a/t_b を大きくしていくと、 $V_a/t_b = 1.95$ のときに $2k_F$ SDW- $4k_F$ CDW 共存状態が安定化しはじめ、 $1.95 < V_a/t_b < 2.9$ の領域で、この共存状態が基底状態となっている。 $V_a/t_b = 2.9$ に達すると、 $2k_F$ SDW- $2k_F$ CDW 共有状態もまた自己無撞着な解となる。しかし、この値でただちに相転移が起こるわけではない。その理由は、この領域ではまだ $2k_F$ SDW- $4k_F$ CDW 共存状態の方がエネルギーの値が低いからである。この状況は V_a/t_b が 3.1 に達するまで続く。 V_a/t_b が 3.1 を越えると、 $2k_F$ SDW- $2k_F$ CDW 基底状態の方が $4k_F$ CDW との共存状態よりエネルギーが低くなる。このことは 1 次元相転移であることを意味している。この 2 つのオーダーパラメータの組に対する全エネルギーを図 3.8 に示した。

次に V_2 を大きくしていき $V_2/V_a > 0.63$ の領域となると、 $2k_F$ SDW- $2k_F$ CDW の共存状態が安定となる臨界値 V_a/t_b の方が、 $4k_F$ CDW の共存状態が安定化する V_a/t_b より小さくなる。従ってこの場合には、 V_a/t_b を大きくしていったときに、純粋な SDW 状態から $2k_F$ CDW との共存状態への 2 次相転移が先に起こるので、1 回しか転移は起こらない。

V_a/t_b と V_2/V_a の 2 つの比を変化させ、相図を決定したのが図 3.9 である。2 本の実線は純粋な SDW 基底状態から $2k_F$ SDW- $4k_F$ CDW 共存状態または $2k_F$ SDW- $2k_F$ CDW 共存状態への相転移を表す境界である。オーダーパラメータは、これらの実線を越えるときに「とび」を示さないことから(図 3.6 参照)、これらは 2 次相転移であることを示す。これら 2 つの CDW 共存相は、それぞれ 2) と 3) で示されたような関係式を満たす自己無撞着なオーダーパラメータの値を持つ。これら 2 つの共存相が競合するパラメータ領域では、エネルギーを比較してどちらが真の基底状態であるか決定した。その結果は図 3.9 の点線で示されており、この線上で 2 つの共存相のエネルギーが同じ値となる。つまり、この点線は上で議論したように 1 次相転移を示している。

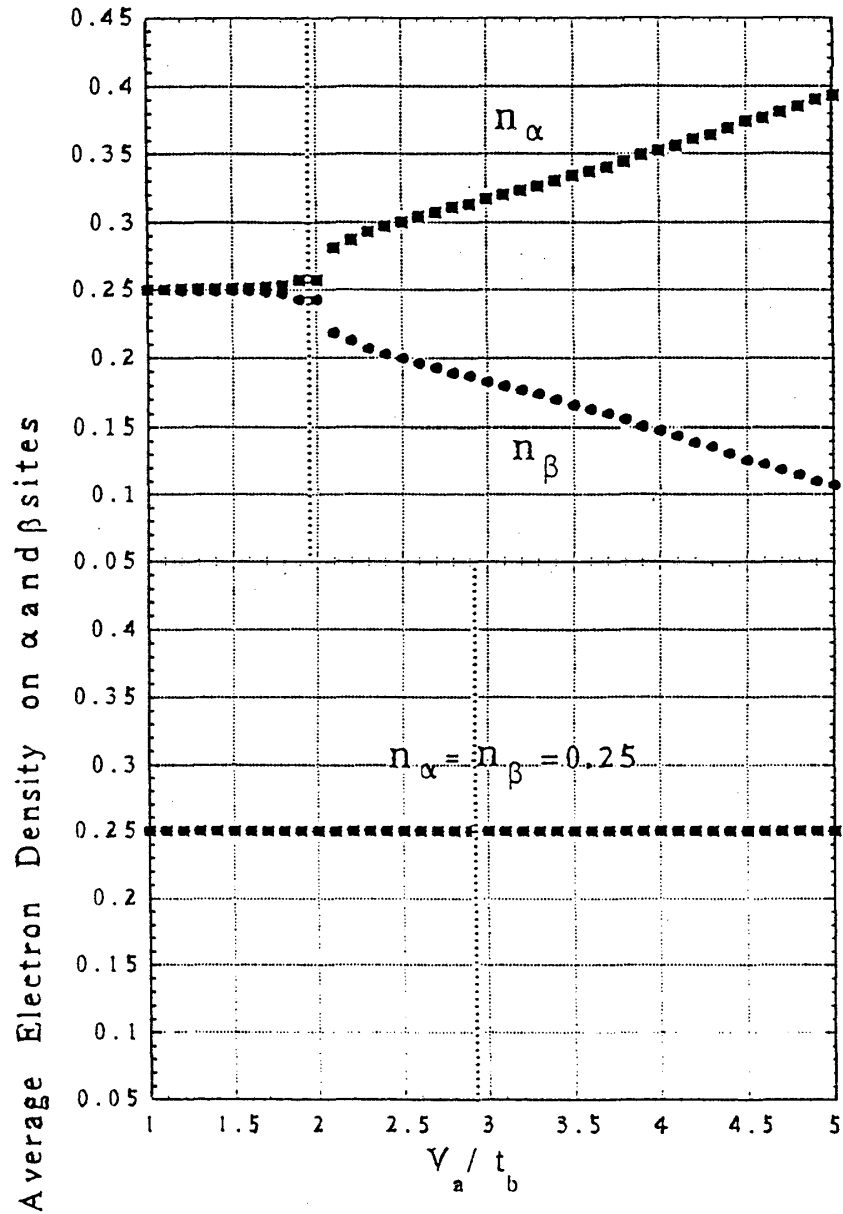


Figure 3.7: $(n_\alpha n_\beta)$ の自己無撞着に決められた値を V_a/t_b の関数として示した。 $U/t_b = 4.0$ 、 $V_b/V_a = 0.8$ 、 $V_2/V_a = 0.55$ の値を用いている。上半分の図のオーダーパラメータは 2) の条件を満たすもので、下半分の図のオーダーパラメータは 3) を満たす。

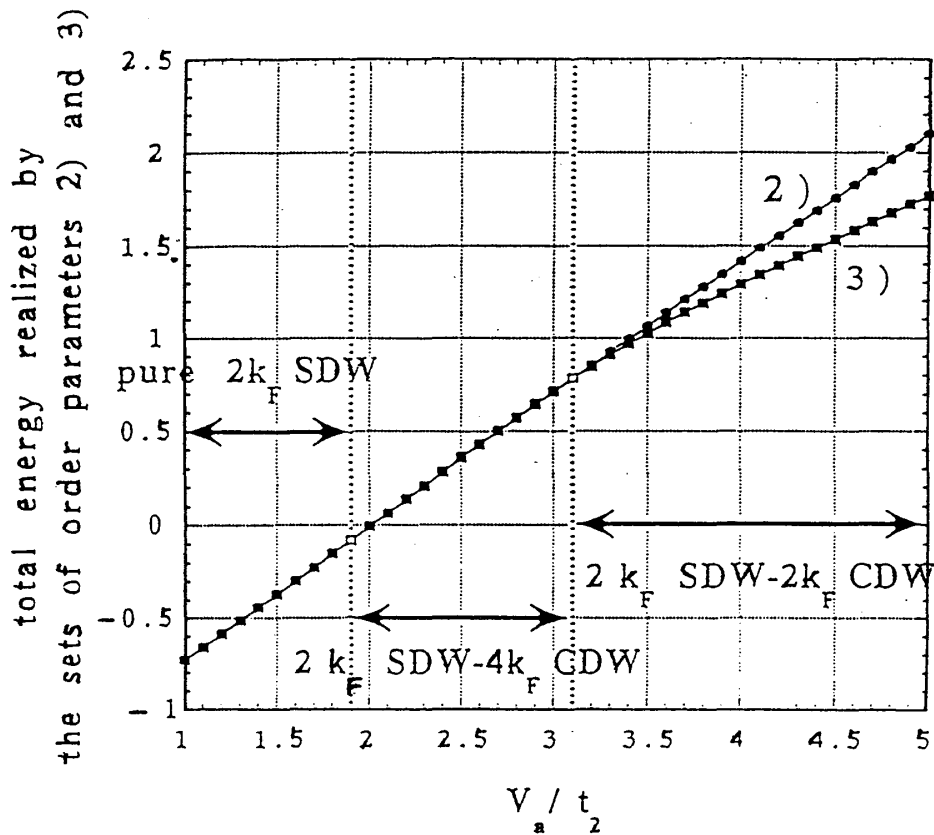


Figure 3.8: 自己無撞着に決められたオーダーパラメータが 2) と 3) で示された条件を満たす場合の、全エネルギーを V_a/t_b の関数として描いた。 $U/t_b = 4.0$ 、 $V_b/V_a = 0.8$ 、 $V_2/V_a = 0.55$ の値を用いている。

3.2.3 議論とまとめ

図 3.9 の相図から以下のことが結論される。次最近接クーロン相互作用 V_2 を考慮すると、 $2k_F$ SDW と $2k_F$ CDW の共存が可能となる。このモデルでは、すべての相互作用が電子間相互作用によるものなので、得られた CDW は必ずしも格子変位や格子変形を伴わない。この結果は Pouget と Ravy[6] によって見出された実験と一致する。

同じ枠組の中で $2k_F$ SDW と $4k_F$ CDW の共存も見出された。我々はこれら 2 種類の共存状態が相互作用パラメータ、とくに最近接と次最近接の相互作用の大きさに依存して生じることを示した。ここでは示さなかったが、もし $t_a = t_b$ とおくと、相図は劇的に変わる。つまり $2k_F$ SDW と $4k_F$ CDW 共存相が生じる V_a/t_b の臨界値がずっと小さな値となり、 $2k_F$ CDW 共存相が抑制されてしまうということがわかっている。また $t_a \neq t_b$ であるが $V_a = V_b$ とおいた場合には、 V_2 が十分大きければ、 $2k_F$ SDW と $2k_F$ CDW の共存相が実現することも見出した。これらのことから二量体化と次最近接クーロン相互作用 V_2 がある程度大きいこと、この 2 つの要因が、1 次元 1/4 充填伝導体での $2k_F$ SDW と $2k_F$ CDW との共存相実現のための決定的要因であることが結論される。

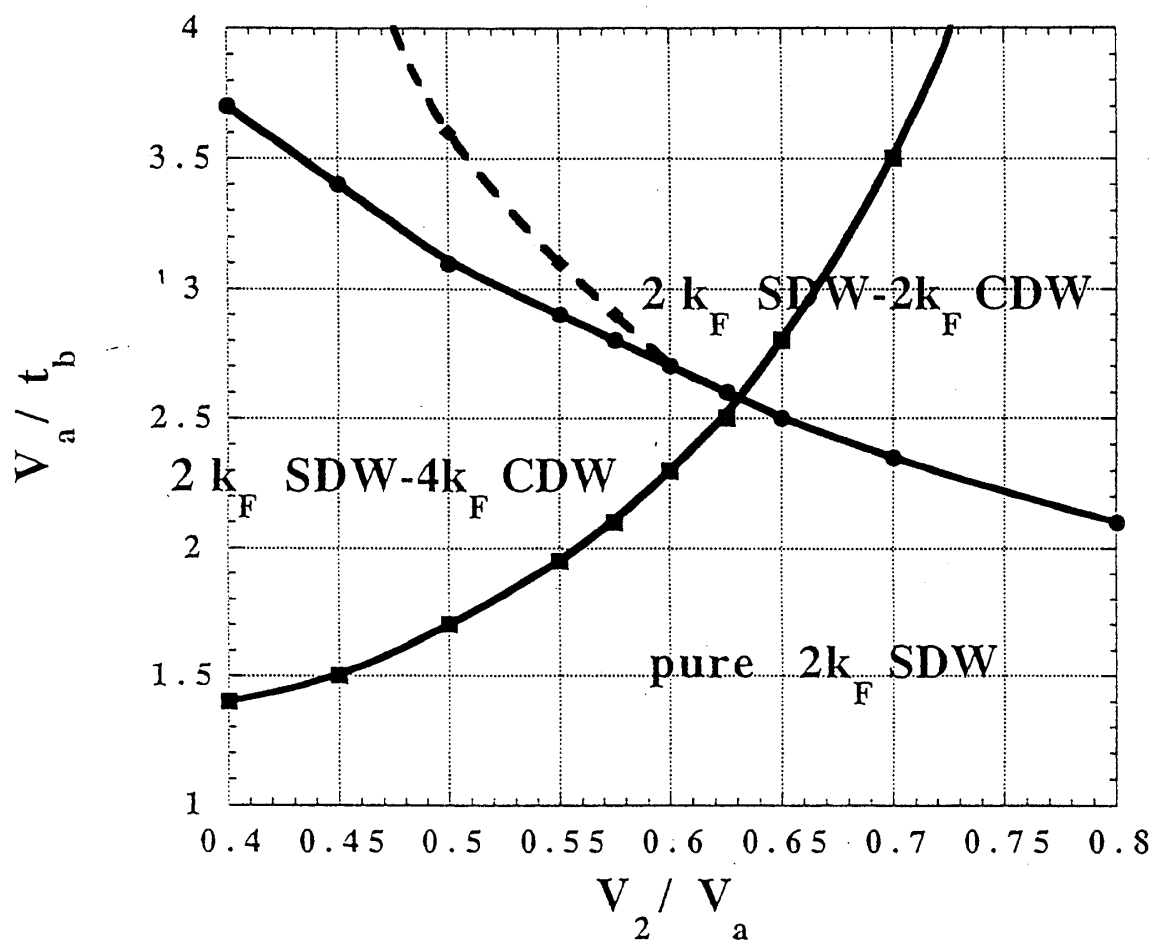


Figure 3.9: 最近接と次最近接のクーロン相互作用を考慮した 1/4 充填 1 次元ハバードモデルの相図。 $U/t_b = 4.0$ と $V_b/V_a = 0.8$ の値を用いている。

Chapter 4

全体のまとめと将来の挑戦

前章で $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ での $2k_F$ SDW と $2k_F$ CDW の共存がどのようにして可能となるかについて、2つの理論的モデルを用いて説明した。

第1章で紹介したように、TMTSF 塩と TMTTS 塩は擬1次元 $1/4$ 充填有機伝導体の典型である。しかし、第1章でも少しふれたように、これらの物質の電氣的性質や、その振舞いについては未だ理解されていない点も残されている。

1つの典型的な例は、SDW の質量増大効果である [5]。また NMR で観測された SDW の2段相転移の可能性ということも問題になっている [39]。我々は $2k_F$ SDW と $2k_F$ CDW 共存ということがこれらの問題に対する解決の手掛かりを与えるものであると考えている。もちろんそのためには理論を有限温度の場合に拡張するなどといったことが必要になる。これらの問題に取り組むためには、我々がここで行なった平均場近似以外にも、くりこみ群の方法を用いるということも有力な方法であろう。

さらに一般的な視点からは、電子密度を変えて充填率を変えたときに共存相がどのような影響をうけるかという問題は、理論的にも実験的にも調べる価値のあることであると思われる。電子密度を変えることは、実験的にはドーピングによって実現できる。もちろん充填率コントロールはそれ自体、有機伝導体の物理の将来にとっての大きな課題の1つである [40]。

謝辞

この修士論文のテーマを示唆し、2つの投稿論文とこの修士論文の原稿を見て下さった小形正男助教授に感謝いたします。

また、鹿児島誠一教授、福山秀敏教授、前田京剛助教授、鈴木順三教授、米満賢治助教授には貴重な御教授と助言をいただき感謝いたします。

最後に、小形研の皆様に多大な支援をいただき誠にありがとうございました。彼らなしでは駒場での生活はもっと大変なものになっていたことと思います。

Bibliography

- [1] for review see D. Jérôme and H. J. Schulz: “Organic Conductors and Superconductors” *Advances in Phys.* **31** (1982) 299.
- [2] K. Penc and F. Mila: *Phys. Rev. B* **50** (1994) 11429.
- [3] N. Tanemura and Y. Suzumura: *J. Phys. Soc. Jpn.* **65** (1996) 1792.
Y. Suzumura: to be published in *J. Phys. Soc. Jpn.* **66** (1997).
- [4] H. Seo and H. Fukuyama: *J. Phys. Soc. Jpn.* **66** (1997) 1249.
- [5] for review see G. Grüner: “Density Waves in Solids” *Frontiers In Physics*, Vol. 89. (Addison-Wesley Publishing Company 1994)
- [6] J. P. Pouget and S. Ravy: *Synth. Met.* **85** (1997) 1523.
- [7] K. Bechgaard, C. S. Jacobsen, K. Mortensen, H. J. Pedersen and N. Thorup: *Solid State Commun.* **33** (1980) 1119.
- [8] C. S. Jacobsen, D. B. Tanner and K. Bechgaard: *J. Phys. Colloq.* **46** (1983) 21.
- [9] G. M. Danner, W. Kang and P. M. Chaikin: *Phys. Rev. Lett.* **72** (1994) 3714.
- [10] H. Seo: Master Thesis (1997)
- [11] J. P. Pouget and S. Ravy: *J. de Phys. I* **6** (1996) 1501.
- [12] D. Jérôme and H. J. Schulz: *Adv. Phys.* **31** (1982) 299.
- [13] C. Coulon, P. Delhaes, S. Flandrois, R. Lagnier, E. Bonjour and J. M. Fabre: *J. Phys. (France)* **43** (1982) 1059.
- [14] B. Dumoulin, C. Bourbonnais, S. Ravy, J. P. Pouget, C. Coulon: *Phys. Rev. Lett.* **76** (1996) 1360.

- [15] S. Barisic and S. Brazovskii: "Recent Developement in Condensed Matter Physics"
ed. by J. T. Devreese Vol. 1, (Plenum, New York 1981) p.327.
- [16] K. Mortensen et al.: Phys. Rev. B **25** (1982) 3319.
- [17] L. G. Caron and C. Bourbonnais: Physica **23B** (1986) 453.
- [18] K. Bechgaard and D. Jérôme: Physica Scripta **T39** (1991) 37.
- [19] W. Kang, S. T. Hannahs and P. M. Chaikin: Phys. Rev. Lett. **70** (1993) 3091.
- [20] D. Jérôme, A. Mazaud, M. Rimbault and K. Bechgaard: J. Phys. Lett. **41** (1980)
L95.
- [21] K. Mortensen, Y. Tomkiewicz, T. D. Schultz and E. M. Engler: Phys. Rev. Lett. **46**
(1981) 1234.
- [22] L. P. Le: Phys. Rev. B **48** (1993) 7284.
- [23] J. M. Delrieu, M. Roger, Z. Toffano, A. Mopadour and K. Bechgaard: J. Phys. **47**
(1986) 839; T. Takahashi, Y. Maniwa, H. Kawamura and G. Saito: J. Phys. Soc.
Jpn. **55** (1986) 1364.
- [24] L. Ducasse, M. Abderrabba and B. Galois: J. Phys. **C18** (1985) L947.
- [25] D. Jérôme: Mol. Cryst. Liq. Cryst. **79** (1982) 155.
- [26] M. Ribault, J. P. Pouget, D. Jérôme and K. Bechgaard: J. Phys. Lett. **41** (1980)
L607; J. P. Pouget, R. Moret, R. Comes, K. Bechgaard, J. M. Fabre and L. Giral:
Mol. Cryst. Liq. Cryst. **79** (1982) 129.
- [27] S. Tomic, J. R. Cooper, W. Kang, D. Jérôme and K. Maki: J. Phys. I. France **1**
(1991) 1603.
- [28] J. Hubbard: Phys. Rev. B **17** (1978) 494.
- [29] D. Cabib and E. Callen: Phys. Rev. B **12** (1975) 5249.
- [30] J. E. Hirsch and D. J. Scalapino: Phys. Rev. Lett. **50** (1983) 1168; Phys. Rev. B **27**
(1983) 7169; **29** (1984) 5554.

- [31] K. C. Ung, S. Mazumdar and D. Toussaint: Phys. Rev. Lett. **73** (1994) 2603.
- [32] K. Penc and F. Mila: Phys. Rev. B **50** (1994) 11429.
- [33] A. W. Overhauser: Phys. Rev. **167** (1968) 691.
- [34] N. Kobayashi and M. Ogata: J. Phys. Soc. Jpn. **66** (1997) 3356.
- [35] L. Ducasse, M. Abderrabba, M. Hoarau, J. Pesquer, M. Gallois, B. Gallois and J. Gaultier: J. Phys. C (GB) **19** (1986) 3805.
- [36] S. E. Brown, B. Alavi and G. Gruner: Phys. Rev. B **46** (1992) 10483.
- [37] S. Kagoshima: private communications.
- [38] N. Kobayashi, M. Ogata and K. Yonemitsu: J. Phys. Soc. Jpn. **67** (1998) 1098.
- [39] K. Hiruma, T. Nakamura and T. Takahashi: Synth. Met. **86** (1997) 2069.
- [40] H. Fukuyama: Lecture at Sasaki Gakujutsu Symposium, Osaka, Japan (1997)